



HAL
open science

Analyse des propriétés optiques des aérosols observés en Arctique pendant la campagne de printemps de l'API/POLARCAT.

Raphaël Adam de Villiers

► To cite this version:

Raphaël Adam de Villiers. Analyse des propriétés optiques des aérosols observés en Arctique pendant la campagne de printemps de l'API/POLARCAT.. Sciences de l'environnement. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2011. Français. NNT: . tel-00817146

HAL Id: tel-00817146

<https://theses.hal.science/tel-00817146>

Submitted on 23 Apr 2013

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Ecole Doctorale Sciences de l'Environnement en Ile de France (EDSE)
UFR des Sciences de l'Environnement

Analyse des propriétés optiques des aérosols observés en Arctique pendant la campagne de printemps de l'API/POLARCAT.

THÈSE

pour l'obtention du titre de

Docteur de l'université Paris VI

(spécialité Sciences de l'Environnement)

par

ADAM de VILLIERS Raphaël
Soutenue le 29 Mars 2011

Composition du jury

<i>Président :</i>	Pr. Michel CABANE
<i>Rapporteurs :</i>	Pr. Pascal RANNOU Pr. Hervé DELBARRE
<i>Examineurs :</i>	Pr. Alfons SCHWARZENBOECK Dr. Augustin COLETTE
<i>Directeurs de Thèse :</i>	Dr. Gérard ANCELLET Dr. Jacques PELON

Mis en page avec la classe thloria.

Remerciements

Les remerciements.

merci

Table des matières

Introduction

Chapitre 1

L'impact climatique des espèces à courte durée de vie en Arctique.

1.1	L'aérosol troposphérique.	3
1.2	L'ozone troposphérique.	7
1.3	Impact radiatif global des aérosols et de l'ozone troposphérique.	8
1.3.1	Impact radiatif global des aérosols.	8
1.3.2	Impact radiatif global de l'ozone troposphérique.	10
1.4	Impact des aérosols et de l'ozone sur le climat Arctique.	11
1.4.1	Introduction.	11
1.4.2	Sources et variabilité de l'aérosol troposphérique en Arctique.	11
1.4.3	Sources et variabilité de l'ozone troposphérique en Arctique.	13
1.4.4	Aspects saisonniers du transport des aérosols et de l'ozone.	14
1.4.5	Impact radiatif lié aux aérosols et à l'ozone en Arctique.	18

Chapitre 2

Campagne de mesures POLARCAT

2.1	Introduction	27
2.2	Instruments à bord de l'ATR-42	29
2.2.1	Mesures In-situ	29
2.2.2	Téledétection Lidar LNG	30
2.3	Paramètres optiques étudiés.	33
2.4	Déroulement de la campagne POLARCAT France printemps.	37
2.4.1	Outils de prévisions et planification.	37
2.4.2	Caractéristiques des vols réalisés.	38
2.5	Contextes météorologiques des vols effectués.	43

2.5.1	Exploration Frontale : 30 mars - 1er avril, vol 24 à 26.	43
2.5.2	Exploration interfrontale : 3 avril - vol 27.	48
2.5.3	Transport issue d'un régime de transport de secteur Sud : 6 avril - vol 28.	48
2.5.4	Oscillation frontale : 7 et 8 avril - vol 29 à 32.	48
2.5.5	Dépression au dessus de la Finlande : 9 avril - vol 33.	53
2.5.6	Exploration interfrontale : 10 et 11 avril - vol 34-35.	53
2.6	Conclusion	57

Chapitre 3

Climatologie POLARCAT Printemps

3.1	Introduction	59
3.2	Variabilité des régimes de transport associés aux couches d'aérosols observées.	60
3.2.1	Méthodologie	60
3.2.2	Variabilité spatiale des régimes de transport associés aux couches d'aérosols observées.	61
3.2.3	Variabilité temporelle des régimes de transport associés aux couches d'aérosols observées.	62
3.3	Analyse des observations du lidar LNG	64
3.3.1	Méthodologie pour caractériser les couches d'aérosol à partir du lidar LNG	64
3.3.2	Variabilité temporelle des couches d'aérosol observées par LNG. . .	72
3.3.3	Variabilité spatiale des couches d'aérosol observées par LNG.	74
3.4	Climatologie des couches d'aérosols observées par CALIOP.	77
3.4.1	Variation temporelle de la distribution des couches d'aérosols issues des produits opérationnels.	77
3.4.2	Variabilité spatiale de la distribution des couches d'aérosols issues des produits opérationnels CALIOP.	81
3.4.3	Variabilité spatiale des paramètres optiques pour les mesures CA- LIOP niveau 1	86
3.4.4	Discussion des différences observées sur les paramètres optiques. . .	88
3.5	Conclusion.	93

Chapitre 4

Etude lagrangienne des propriétés optiques des couches observées pendant la campagne.

4.1	Introduction	95
4.2	Variabilité des propriétés optiques associée aux données in-situ.	95
4.2.1	Analyse des profils verticaux du lidar LNG.	95
4.2.2	Comparaison de CR^* , δ_{355} et des spectres de taille.	104
4.3	Propriétés optiques des couches d'aérosols par CALIOP.	109
4.3.1	Méthodologie	110
4.3.2	Etude des couches I et III et VI associées aux régimes de transport de secteur Nord	110
4.3.3	Etude des couches II, IV et V et associées aux régimes de transport de secteur Sud.	123
4.3.4	Analyse de la classification des produits opérationnels (FCF).	133
4.4	Conclusion	134

Chapitre 5

Transport vers l'Arctique des émissions des feux en Russie pendant l'été 2010.

5.1	Introduction.	137
5.2	Contexte Météorologique.	137
5.3	Caractérisation des aérosols émis lors des Feux Russes de l'été 2010.	144
5.3.1	Caractérisation du transport des panaches de feux.	144
5.3.2	Propriétés optiques des panaches d'aérosols observés par CALIOP.	147
5.4	Conclusion.	155

Conclusion Générale.

Annexes

Annexe A

FLEXPART

A.1	Données météorologiques	161
A.2	Architecture	162
A.3	Principales paramétrisations du modèle FLEXPART	162

A.4	Modélisation forward et backward	164
A.4.1	Trajectographie	164
A.4.2	Coupe fractions particules	165

Annexe B Méthode d'observations
--

B.1	Description générale de la technologie lidar	167
B.2	Propriétés optiques des diffuseurs	171
B.3	Equation lidar pour un lidar à rétrodiffusion élastique	173

Annexe C CALIPSO

Annexe D Airborne measurements of aerosol optical properties related to early spring transport of mid-latitude sources into the Arctic

Bibliographie	211
----------------------	------------

Introduction

Le changement climatique est plus rapide aux hautes latitudes arctiques que dans le reste du globe. Les températures moyennes ont augmenté deux fois plus que le taux moyen global sur ces 100 dernières années [IPCC, 2007]. Les précipitations ainsi que les déversements des rivières dans l'océan Arctique se sont également accentués [Wu et al., 2005] alors que l'extension de la mer de glace ne cesse de diminuer dramatiquement [Parkinson et al., 1999]. Une meilleure compréhension des mécanismes gouvernant le climat arctique et ses changements s'avère donc essentielle et urgente. Bien qu'une grande partie des changements globaux soit liée à l'augmentation globale des gaz à effet de serre (GES), d'autres processus jouent un rôle comme le transport des aérosols vers l'Arctique.

A cause de son éloignement des sources anthropiques, la troposphère arctique, a souvent été considérée comme peu polluée. Cependant, lors de l'année internationale de la géophysique 1957/58, des pilotes qui survolaient la région arctique découvrirent une étrange brume qui diminuait significativement leur visibilité [Greenaway(1950), Mitchell (1957)]. Il s'avère que ce phénomène est récurrent et observé chaque hiver et printemps. Ceci illustre la présence d'aérosols issus des moyennes latitudes. De plus, les effets radiatifs des aérosols, direct et indirect, sont différents comparés aux autres régions du globe. En raison d'un fort albédo de surface, même des couches d'aérosols ayant une faible épaisseur optique peuvent contribuer à perturber le bilan radiatif du système Terre/Atmosphère [Pueschel et Kinne, 1995]. Durant la nuit polaire et le printemps, quand l'angle zénithal est grand, l'augmentation d'une absorption du rayonnement IR par les nuages ou les aérosols, contribuent au réchauffement de la surface et donc à la fonte des glaces [MacCracken et al., 1986].

L'aérosol anthropique n'est pas le seul à affecter l'arctique. En effet les images satellites nous montrent que l'arctique peut aussi être affecté par le transport d'aérosols issus des feux de forêts importants dans la région boréale. Ces feux sont une grande source de carbone noir dans la troposphère libre entre 3 et 9 km [Lavoue et al., 2000]. Vu que la région boréale se réchauffe d'année en année, la fréquence des feux est de plus en plus grande [Stocks et al., 1998]. On estime que 5 à 20 millions d'hectares brûlent chaque année au Canada et en Alaska. La fumée issue de ces feux peut être transportée à l'échelle continentale [Wotawa et Trainer, 2000], intercontinentale [Forster et al., 2001] et hémisphérique [Damoha et al., 2004] mais l'inconnue reste la hauteur d'injection de ces fumées car le transport diffère entre les basses couches (couche limite) et la troposphère libre. Il a été montré récemment que la fumée provenant de feux boréaux pouvait s'introduire aussi dans la stratosphère [Fromm et al., 2005] où le temps de résidence peut être assez long pour avoir un impact sur l'équilibre de l'ozone stratosphérique polaire. Le dépôt au

sol de carbone noir a aussi pour conséquence de diminuer l'albédo de surface [Hansen et Nazarenko, 2004] et donc de contribuer au réchauffement climatique en arctique en accélérant les fontes des glaces (Terre et mer). Cependant, peu de données sont disponibles pour quantifier cet effet. Des simulations suggèrent une augmentation des émissions de l'est asiatique et un impact sur les concentrations de CO et d'aérosol en arctique [Koch et Hansen, 2005].

Pour comprendre l'impact des différentes sources, il est nécessaire de conduire une étude sur les mécanismes de transport des aérosols vers l'arctique ainsi qu'un suivi lagrangien de leurs propriétés optiques afin de caractériser leur transformation pendant le transport à longue distance. Deux approches ont été considérées lors de cette thèse.

La première a été d'analyser à la fois des mesures aéroportées et depuis l'espace (via la plateforme CALIPSO) obtenues pendant la campagne de mesure internationale, POLARCAT, qui a eu lieu au printemps (à Kiruna au nord de la Suède) et l'été 2008 (au Groenland), dans la région arctique. Il s'agit à la fois de mesures in-situ et lidar pour caractériser d'un point de vue microphysique et chimique, les masses d'air arctique, à ces deux périodes de l'année. Dans ce travail, l'accent est mis sur la campagne de printemps, qui a permis l'observation de plusieurs épisodes riches en aérosol provenant de différentes régions des moyennes latitudes.

L'autre approche a consisté à identifier un événement important d'émission d'aérosols, d'étudier et de caractériser les propriétés optiques de ces panaches pendant le transport. Les épisodes de feux ayant eu lieu lors de l'été 2010 en Russie ont été choisis, pour leur intensité, leur durée d'activité et leur proximité avec l'arctique.

Dans cette étude, la caractérisation des masses d'air, des transformations des propriétés optiques lors du transport des aérosols à longue distance et des sources, ont été mesurées à partir des observations du lidar CALIOP sur la plateforme CALIPSO. La limitation de ces mesures depuis l'espace vient des problèmes de rapport signal sur bruit et un objectif de la thèse a aussi été une validation des mesures lidar spatiales en utilisant le lidar aéroporté.

Enfin, l'analyse de la variabilité des voies de transport et des sources affectant les régions arctiques, a été conduite avec des outils du type de celui développé par le NILU : le modèle FLEXPART. Ce modèle de transport lagrangien permet d'effectuer des simulations trajectographiques nous permettant d'identifier les voies de transport associées aux observations. Combiné aux mesures spatiales il est alors possible de déterminer un suivi lagrangien des propriétés optiques de la masse d'air lors de son transport.

Chapitre 1

L'impact climatique des espèces à courte durée de vie en Arctique.

1.1 L'aérosol troposphérique.

Le terme aérosol se réfère à toutes les particules solides ou liquides en suspension dans l'air. Les aérosols peuvent être classés en deux catégories. Les aérosols primaires sont émis directement dans l'atmosphère à partir de sources naturelles (érosion, resuspension, feux de biomasse) ou anthropiques (transport, industries, chantiers de construction). Les aérosols secondaires résultent de la conversion de gaz atmosphériques en particules. On peut citer le cas des aérosols organiques secondaires résultant de l'oxydation des COV en phase gazeuse, puis de leur condensation et de la transformation des particules primaires par réactions chimiques hétérogènes.

Quatre familles principales d'aérosols sont présentes au sein de la basse troposphère.

- *les aérosols carbonés* : ils sont composés de deux types de carbone. Une fraction très compacte et peu réactive de "carbone suie" (Black carbon = BC ou carbone noir = CB) proche de la structure graphite. Le BC absorbe le rayonnement et est réfractaire thermiquement (température de fusion supérieure à 800°C). Une seconde fraction peu dense et très réactive chimiquement correspond au Carbone Organique (Organic Carbon = OC). Sa particularité est de piéger des composés organiques volatiles (COV) à leur surface. Le carbone organique est décomposé sous l'effet de la chaleur à partir de 400°C et a tendance à diffuser le rayonnement. On distingue le Carbone Organique Primaire (POA) émis à proximité des sources de combustion et le Carbone Organique Secondaire (SOA) issu de la transformation physicochimique de POA.

En réalité, la distinction entre BC et OC ne se fait pas de manière tranchée. Les propriétés physico-chimiques de l'aérosol carboné évoluent progressivement en fonction du rapport BC/OC. Les aérosols carbonés résultent principalement des processus anthropiques de combustions incomplètes des hydrocarbures fossiles (transport, industrie, chauffage) et des feux de biomasse. Les proportions du rapport BC/OC sont donc très variables en fonction des lieux de prélèvements. Höller et al., (2002) comparent les rapports pour différents sites de prélèvements situés au Japon et aux

Etats-Unis : ils varient entre 0.80 et 3.9 pour l'aérosol en milieu urbain, 1.1 et 1.6 pour l'aérosol marin et vaut, 4.7 en milieu rural.

- *les aérosols inorganiques* : ils regroupent les nitrates et les sulfates, deux familles d'espèces secondaires produites principalement par des réactions chimiques à partir de leurs précurseurs (azote et soufre). En général, ce sont les radicaux OH, qui en journée oxydent SO_2 et NO_2 , respectivement en acide sulfurique (H_2SO_4) et en acide nitrique (HNO_3). La nuit, les nitrates sont produits par l'oxydation de NO_2 par O_3 , conduisant à la formation de NO_3 . Ces derniers réagissent avec NO_2 pour former du N_2O_5 , qui peut s'hydrolyser en nitrate. L'oxydation du SO_2 en sulfate est beaucoup plus rapide en phase aqueuse (brouillard, nuage) qu'en phase gazeuse.
- *les poussières minérales* : ce sont des particules primaires qui sont issues directement de l'érosion éolienne ou du processus de saltation. La saltation est un processus dynamique assurant le transport des particules par saut. Les vitesses du seuil d'érosion et de saltation varient en fonction de la nature du sol et des conditions météorologiques. Elles peuvent être déterminées en laboratoire [Lasserre et al., 2005]. Les principales zones d'émissions de l'aérosol terrigène sont les déserts Sahariens et Chinois. Les émissions de poussières minérales représentent une contribution massive majeure de la masse globale en aérosols de l'atmosphère (Fig. 1.2).
- *les sels marins* : ils sont classés en trois types d'aérosols [Blanchard1985]. Les embruns provoqués par l'écrêtement des vagues et gouttes de film et les gouttes de jet. Les gouttes films sont provoquées par le déferlement des vagues qui engendre la remontée des bulles d'air à la surface, qui éclatent au contact de l'air pour ainsi libérer les sels marins. L'émission est fonction de la vitesse du vent et de la température. Il s'agit d'aérosols en mode grossier. Leur taille varie entre $0.5 \mu m$ et $5 \mu m$. Pour des vitesses de vent supérieures à 15 m/s, l'écrêtement et le déferlement des vagues peuvent produire des particules de l'ordre de quelques dizaines de micromètres jusqu'au millimètre. Ces particules sont d'un intérêt atmosphérique particulier car elles constituent des noyaux de condensation pour les gouttelettes nuageuses. Elles peuvent également réagir avec certains gaz entrant dans le cycle de l'ozone tel que NO_2 [Aghnatios2008] notamment au niveau des zones industrielles côtières.

Dans l'atmosphère, la pollution particulaire est toujours un mélange de différentes familles d'aérosols. Ces mélanges peuvent être de type interne ou externe (Fig.1.1). Le cas du mélange externe suppose que les différentes familles de particules sont proches les unes des autres sans interagir. Cette caractéristique est vérifiée uniquement à proximité des sources d'émissions avant que les particules ne réagissent chimiquement entre elles. En revanche, au cours de leur transport, des aérosols de différentes familles se mélangent de manières partielles ou totales. Les particules sont en interaction physicochimique, on parle alors de mélange interne. Certaines campagnes de mesures s'appliquent à décrire une famille d'aérosol avec détail. Favez et al., (2008) montrent ainsi la tendance saisonnière de la composition de la phase carbonée et inorganique de l'aérosol dans la région du Caire.



FIGURE 1.1 – Exemple de mélange interne (à gauche) et de mélange externe (à droite) entre du sulfate d'ammonium et des particules de "black carbone" (rouge)

La figure 1.2 fournit une estimation des flux de particules biogènes et anthropiques au niveau global. On remarque tout d'abord la disparité entre l'intensité des émissions naturelles, qui représentent la majorité des émissions particulaires (90 %) par rapport aux émissions anthropiques (10 %). La majeure partie des émissions particulaires provient des aérosols terrigènes et des sels de mer. Les aérosols fins sont composés majoritairement de carbone particulaire, de sulfates et de métaux lourds. La fraction d'aérosols naturels émise est très variable. Selon la nature des sources (volcanique, désert, océans et mers) et varie selon les conditions météorologiques (fort vent favorisant l'émission de poussières terrigènes).

Pour les aérosols anthropiques, la variabilité est liée à la méthode de calcul employée afin d'estimer les flux d'émissions. Ces derniers sont calculés à partir d'un facteur d'émissions propre à la source considérée (énergie consommée ou unité d'activité de la source). Les facteurs d'émissions sont relativement bien connus pour les gaz alors qu'ils le sont moins pour les émissions de particules.

La distribution des aérosols dans l'atmosphère dépend de leur temps de résidence et de la proximité des sources. Le temps de résidence des aérosols est déterminé par les mécanismes de dépôts sec et humide. Il est fonction, de la taille des particules, qui détermine leur vitesse de sédimentation et de l'hygroscopicité de l'aérosol. L'ordre de grandeur du temps de séjour moyen des aérosols dans l'atmosphère est la semaine, de sorte que la variabilité de leur concentration est importante et est directement influencée par la proximité des sources.

Les aérosols sont essentiellement concentrés dans les basses couches de l'atmosphère. Toutefois, les éruptions volcaniques, les feux de forêts et les tempêtes désertiques parviennent à injecter des particules dans la troposphère libre et la stratosphère, augmentant ainsi le temps de vie de l'aérosol.

Origine de la source	Sources	Flux Min Max (Mt.an ⁻¹)
NATURELLE (90 %)		
	PRIMAIRES	
	Poussières minérales	1 000 - 3 000
	Sels de mer	1 000 - 10 000
	Cendres volcaniques	4 - 10 000
	Carbone organique (diamètre > 1 μm)	26 - 90
	SECONDAIRES	
	Sulfates biogènes	80 - 150
	Sulfates volcaniques	9 - 50
	Carbone organique (oxydation)	8 - 40
	COV biogènes)	
	Nitrates	2 - 8
	TOTAL	2 130 - 23 340
ANTHROPIQUES (10 %)		
	PRIMAIRES	
	<i>Carbone organique (0-2 μm)</i>	
	Feux de végétation	45 - 80
	Combustion des hydrocarbures fossiles	10 - 30
	<i>Carbone élémentaire (0-2 μm)</i>	
	Feux de végétation	5 - 9
	Combustion des fuels fossiles	6 - 8
	Poussières industrielles	40 - 30
	SECONDAIRE	
	Sulfates	70 - 220
	Nitrates	10 - 20
	Carbone organique (oxydation)	
	COV anthropiques)	0,5 - 2
	TOTAL	250 - 660

FIGURE 1.2 – Flux global d'émission de particules d'aérosols en Mt/an [Delmas et al., 2005].

1.2 L'ozone troposphérique.

Dans la troposphère (entre 0 et 10 km d'altitude), l'ozone (O_3) est un polluant dit secondaire car produit principalement par la transformation, sous l'effet du rayonnement solaire, des oxydes d'azote (NO_X) [Chameides et al, 1992] et des composés organiques volatiles (COV). L'ozone est produit à partir de la recombinaison entre un atome d'oxygène (O) et de dioxygène (O_2) associé à la photodissociation de NO_2 dans le visible (vers 400 nm). Cette production est donc majoritairement localisée au voisinage des sources d'oxydes d'azote, c'est-à-dire les grands centres urbains, industriels ou les zones fréquemment perturbées par les processus de combustion de biomasse. En absence d'oxydes d'azote, l'ozone est détruit par déposition au sol et par photodissociation dans le proche UV. Les concentrations d'ozone dans la troposphère sont en général inférieure à 100 ppb.

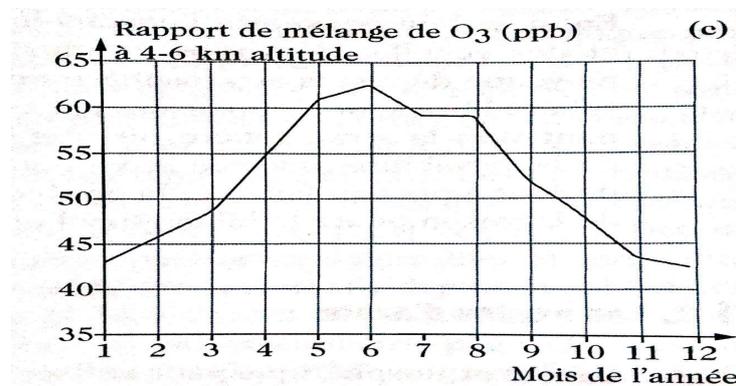


FIGURE 1.3 – Evolution temporelle des rapports de mélanges d'ozone troposphérique, exprimées en ppb et mesurée sur une période d'un an dans une couche d'épaisseur 2 km à 5 km d'altitude au dessus de la France (station OHP 1991-1995). [Delmas et al., 2005]

Cycle annuel.

Enfin, l'analyse de la variation saisonnière des concentrations moyennes mensuelles d'ozone à 500 hPa aux moyennes latitudes révèle un maximum de concentration au printemps et une amplitude de la variation saisonnière de 20 à 30 ppb (Fig.1.3). Sur des échelles de temps et d'espace, on retrouve une influence relative importante des processus chimiques par rapport aux processus dynamiques, avec pour chacun une variation annuelle de la masse d'ozone troposphérique dans l'hémisphère Nord de l'ordre de 100 à 2500 Tg(O_3).an⁻¹ [Delmas et al., 2005].

La variabilité de l'ozone troposphérique dans une région résulte du transport à longue distance d'ozone et de ses précurseurs. La molécule d'ozone a une durée de vie relativement courte dans la troposphère (quelques semaines). Contrairement aux gaz à effet de serre (GES), la distribution de l'ozone et son forçage radiatif sur le climat ont donc un caractère saisonnier marqué et une distribution géographique hétérogène. Les teneurs en ozone dans la troposphère depuis l'ère pré-industrielle semble avoir plus que triplé au cours du XX^{ème} siècle passant de 15-20 ppb à 60ppb [Delmas et al., 2005].

1.3 Impact radiatif global des aérosols et de l'ozone troposphérique.

Le forçage radiatif [IPCC, 2007] exprime toute atténuation apportée au bilan énergétique du système climatique par des facteurs externes comme la charge de l'atmosphère en aérosols. La figure 1.4 résume l'état de l'art actuel des connaissances sur les différents forçages radiatifs induits par les GES et les différents types de particules, sur la période de 1750-2005. Dans la troposphère, les GES, ont un effet global positif sur le réchauffement. Les effets liés aux aérosols sont plus complexes. En effet, leur contribution au bilan radiatif peut être positive ou négative avec des effets directs, semi directs, indirects.

1.3.1 Impact radiatif global des aérosols.

On distingue trois effets :

- Le forçage direct . Les aérosols interagissent directement avec le rayonnement solaire incident et le rayonnement tellurique. La présence d'aérosols dans les basses couches de l'atmosphère abaisse localement la température atmosphérique (forçage négatif ou effet parasol) du fait d'aérosols diffusants (sulfate et carbone organique) ou bien l'augmente localement (forçage positif) par le biais des aérosols absorbants (carbone de suie, poussières)
- le forçage exercé par les aérosols sur le profil vertical de température, et donc sur la formation des nuages : c'est l'effet semi-direct [Hanse et al. 1997, Ackerman et al., 2000].
- le forçage indirect des aérosols, lié aux interactions aérosols-nuages [Twomey, 1977]. Les aérosols servent de noyaux de condensation dans la formation des nuages. Une forte concentration en aérosols va contribuer à la formation d'un grand nombre de gouttelettes d'eau et par la suite à la formation de nuages très réfléchissants. C'est le premier effet indirect, effet négatif (refroidissant). Les gouttelettes d'eau résultantes, sont de petite taille, insuffisante pour déclencher de façon efficace les précipitations. Ainsi, la durée de vie des nuages est augmentée et la couverture nuageuse globale moyenne accrue. Ce processus constitue le second effet indirect des aérosols, qui peut être positif ou négatif selon l'altitude et la localisation des nuages.

Les incertitudes sur l'impact radiatif des aérosols restent très grandes, d'autant plus, que leur répartition reste très hétérogène contrairement au GES.

La durée de vie très courte des aérosols (quelques semaines) dans l'atmosphère permet aussi au forçage radiatif, de répondre plus rapidement à l'augmentation ou la diminution des émissions. De nombreuses incertitudes demeurent aussi quand à la quantification du rôle des particules aérosols en tant que noyaux potentiels de condensation, permettant la nucléation nuageuse. Ceci est principalement dû à un manque d'observations.

Selon le 4ème rapport de l'IPCC (GIEC), l'évaluation globale du forçage radiatif et de son incertitude, est la suivante :

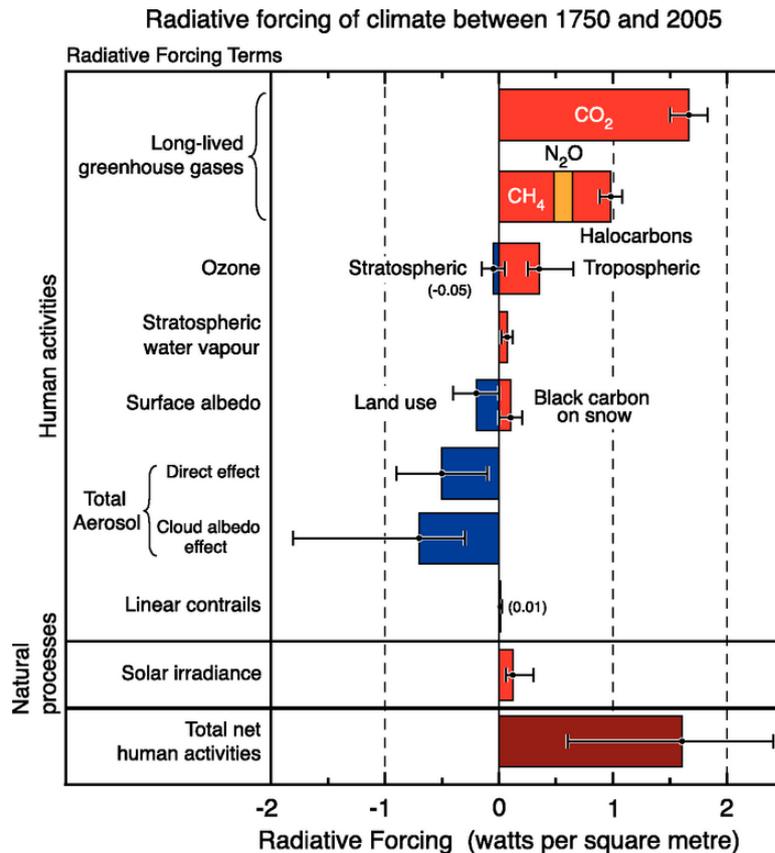


FIGURE 1.4 – Bilan du forçage des GES et des aérosols [IPCC, 2007]

- Effets directs : $-0.5 \pm 0.4 \text{ W.m}^2$.
- Effets indirects : $-0.7 \pm 0.4 \text{ W.m}^2$.

Rappelons que le forçage lié aux principaux GES (CO_2 , méthane et N_2O) est de $+2.3 \pm 0.2 \text{ Wm}^2$.

Cependant, les aérosols ont globalement un forçage radiatif substantiel mais inférieur à celui dû aux GES. Ce forçage radiatif est négatif : il tend à contrebalancer le réchauffement planétaire résultant de l'augmentation des GES. On peut associer l'effet des aérosols à une augmentation de l'albédo moyen de la Terre. Cette atténuation du réchauffement planétaire par les aérosols est estimée à 50%.

L'évaluation de l'impact global des aérosols est plus facile et donne des valeurs plus solides que lorsqu'on considère les aérosols individuellement. Le dernier rapport du GIEC donne une estimation du forçage radiatif des différents types d'aérosols (Fig 1.5).

- sulfates : $-0.4 \pm 0.2 \text{ W.m}^2$.
- carbones organiques : $-0.05 \pm 0.05 \text{ W.m}^2$.

- carbones noirs issus des énergies fossiles : $+0.2 \pm 0.15 \text{ W.m}^2$.
- Nitrates : $-0.10 \pm 0.10 \text{ W.m}^2$.
- sels marins : $-0.10 \pm 0.20 \text{ W.m}^2$.

La grande incertitude sur ces valeurs vient de la difficulté à estimer les quantités des aérosols émis par les activités humaines.

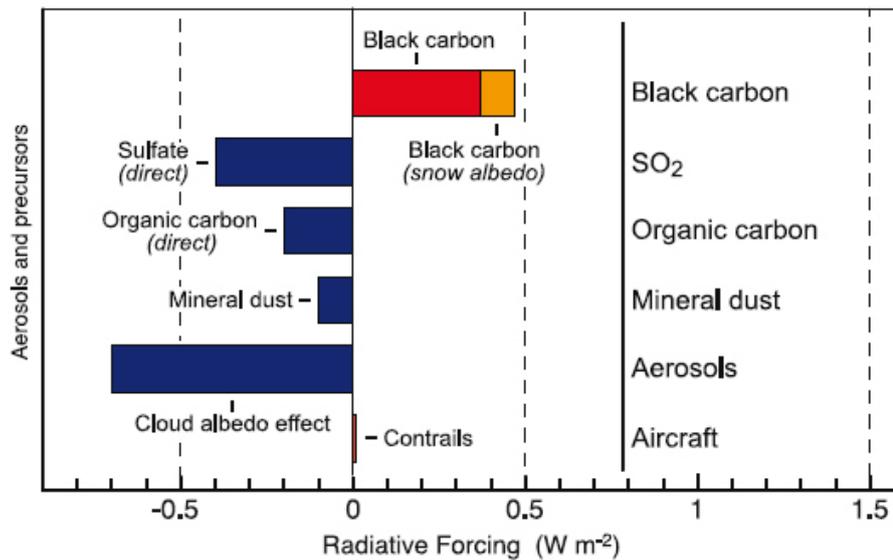


FIGURE 1.5 – Forçage radiatif des différents aérosols [IPCC, 2007]

1.3.2 Impact radiatif global de l’ozone troposphérique.

Les polluants comme le monoxyde de carbone (CO), les oxydes d’azote NO_x et les hydrocarbures peuvent contribuer indirectement aux perturbations climatiques via des processus photochimiques faisant intervenir, par exemple, la production d’ozone dans la troposphère.

En effet, l’ozone est un gaz radiativement actif aux longueurs d’onde correspondant au rayonnement solaire dans la stratosphère, mais présente également dans l’infrarouge, un effet de serre additionnel associé à son augmentation depuis le pré-industriel. Le forçage radiatif global calculé est de 0.35 W.m^2 [IPCC, 2007]. Comme signalé précédemment, ce forçage radiatif de l’ozone troposphérique est hétérogène et présente un maximum atteignant près de 1 W.m^2 à 30°N en moyenne annuelle (Fig. 1.6).

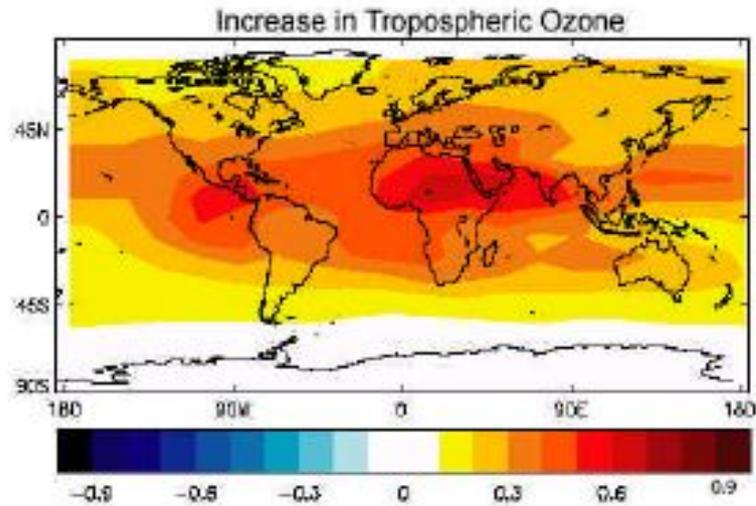


FIGURE 1.6 – Distribution géographique du forçage radiatif annuel moyen $W.m^2$ calculés depuis le pré-industriel (1750) de l'ozone troposphérique. [IPCC, 2007]

1.4 Impact des aérosols et de l'ozone sur le climat Arctique.

1.4.1 Introduction.

Les réductions de la charge atmosphérique de CO_2 sont l'épine dorsale de tout effort significatif visant à atténuer le forçage climatique. Mais, compte tenu de la longue durée de vie du CO_2 dans l'atmosphère, les efforts de réductions ne peuvent pas être réalisés à temps pour obtenir une réponse rapide sur la température de surface. Par conséquent, l'objectif est de limiter l'effet d'autres facteurs responsables des variations de température : le méthane, l'ozone et les aérosols troposphériques. Ces constituants vont être beaucoup plus sensibles à la variabilité du transport, notamment, la variabilité saisonnière.

1.4.2 Sources et variabilité de l'aérosol troposphérique en Arctique.

Sulfates et Nitrates. Des mesures au sol à long terme des taux de sulfate de diffusion de la lumière par les aérosols ont montré, que depuis la fin des années 70, les plus hauts niveaux d'Arctic Haze furent enregistrés dans les années 80 et début 90 (Fig. 1.7, [Quinn et al., 2007]). Ensuite, les niveaux diminuent jusqu'à la fin des années 1990, principalement en raison de réductions des émissions industrielles des nouvelles républiques eurasiennes et, dans une moindre mesure, à des lois plus strictes d'émissions des centrales électriques aux Etats-Unis et en Europe. De 1980 à nos jours, les concentrations de nitrates ont augmenté en liaison avec l'évolution des émissions dues au transport. En Arctique des sources internes existent aussi, même si les émissions de soufre des centrales électriques ont dimi-

nué, tandis que les émissions des moteurs diesel et essence, elles, ont augmenté [Quinn et al., 2007].

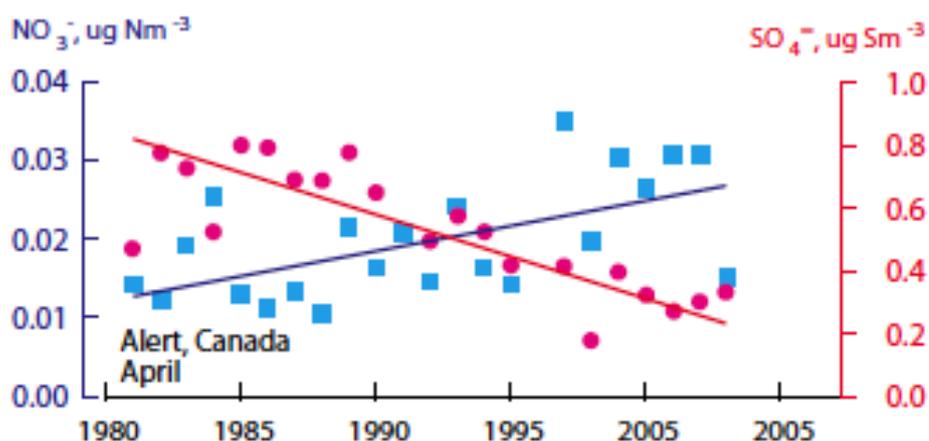


FIGURE 1.7 – Moyenne mensuelle de la concentration en particules de sulfate et nitrate à Barrow, Alaska et Alert, Canada. Les lignes montrent les tendances temporelles avec une diminution (ligne rouge) en sulfate résultant de la baisse des émissions des centrales électriques et une augmentation des nitrates due à la hausse des émissions issues des combustions des carburants diesel et fuel [Quinn et al., 2007].

Impact des BC sur l'Arctique. Il est nécessaire de décrire le rôle des blacks carbon en arctique en séparant les contributions sur le Groenland et les autres régions Arctiques. En effet, les dépôts de BC au Groenland sont plus sensibles aux émissions d'Amérique du nord [Stohl, 2006]. Dans une analyse annuelle, il a été estimé, que les sources européennes et nord américaines contribuent à 40% au BC déposé au Groenland contre 20% pour les sources asiatiques. L'importance relative change en fonction des saisons, cependant, Shindell et al. (2008), a montré que les dépôts totales du printemps sont plutôt d'origine nord américaine et asiatique.

Si on étudie l'évolution des sources de BC sur le siècle dernier, des mesures de carbone noir et autres espèces trace au Groenland ont été effectuées, afin de déterminer les sources du carbone noir déposé sur les 215 dernières années [McConnell et al., 2007]. Les analyses chimiques associées aux rétrotrajectoires de masses d'air, montrent que les feux de forêts boréaux du nord-est américain, furent les sources majoritaires de carbone noir lors des précipitations au Groenland avant l'industrialisation (1850). Depuis 1850, le BC déposé au Groenland apparaît comme une conséquence des activités industrielles en Amérique du nord (1850-1950) et en Asie (1950-aujourd'hui).

Concernant les autres régions de l'Arctique, Shindell et al, (2008) ont montré que les dépôts en Arctique (excepté le Groenland) étaient plus sensibles aux émissions européennes, peu importe la saison. Ainsi, 68% du BC déposé est d'origine européenne,

11% d'Amérique du nord et 22% d'Asie (sud et est).

Rôle des feux sur l'apport de BC en Arctique. Les années où les épisodes d'incendies se font fréquents, les feux boréaux peuvent être une source importante de BC vers l'Arctique. Ainsi, Sthol et al., (2006) ont montré lors de l'été 2004, où les feux furent très intenses sur le Canada et l'Alaska, une augmentation de l'absorption des aérosols arctiques concomitant avec une baisse de l'albédo à Summit, au Groënland. Des mesures de BC sur la neige à Summit confirme la déposition de BC sur la surface enneigée. L'été 2004 se distingue comme celui ayant eu la plus grande concentration de BC en surface, avec des valeurs de l'ordre de 1.0-1.4 ng g⁻¹ [Hagler et al., 2007].

Les incendies de forêt boréaux en Sibérie peuvent avoir un impact plus important que ceux en Amérique du Nord en raison de la plus grande surface affectée [Stohl, 2006]. Les feux ayant eu lieu en Sibérie en 2003 correspondent de 16 à 33 % des épaisseurs optiques d'aérosol observées et entre 40 et 56 % de la masse de BC déposée au nord de 75°N durant le printemps et l'été [Generoso et al., 2007].

1.4.3 Sources et variabilité de l'ozone troposphérique en Arctique.

Les teneurs en ozone en Arctique sont pilotées par différents facteurs (diversité des sources : naturelles ou anthropiques), les mécanismes chimiques et dynamiques. Sa répartition dans la troposphère change avec la latitude. Prenons l'exemple de la coupe verticale de concentration d'ozone obtenue entre Thule (75 °N -67.06°E, Groenland) et Winnipeg (54.35 °N -93.94°E, Canada), le 22 mai 2002 par Browel et al. 2003. Tandis que la répartition de l'ozone est assez homogène sur la verticale aux latitudes sub-arctique, avec un gradient peu ou pas prononcé entre la couche limite et le reste de la troposphère (~ 40 ppbv entre la moyenne troposphère et la surface à 64.58°N -80.23 °E et quasi nul aux alentours de 68°N), on observe des fortes concentrations (70 et 90 ppbv) dans la moyenne et haute troposphère arctique et des concentrations ne dépassant pas 30 ppbv dans la couche limite.

Cette composition s'explique par :

- la perte d'ozone dans la couche limite liée à des mécanismes chimique comme la chimie hétérogène du Brome [Finlayson-Pitts et al., 1990].
- le transport d'ozone provenant des moyennes latitudes et de la stratosphère.

Les sources locales comprennent les émissions des navires [Granier et al., 2006] et peuvent accroître les niveaux d'ozone de l'Arctique, d'un facteur 2 à 3 par rapport à aujourd'hui. Le rôle des feux sur la teneur en ozone en Arctique est important. Les feux émettent de grandes quantités de CO et de composés organiques volatiles (COV), qui favorisent ensuite la production d'ozone dans les régions arctiques (Generoso et al. (2007)). Par ailleurs, ces émissions de précurseurs d'ozone arctique et sub-arctique peuvent augmenter dans la mesure où les régions boréales se réchauffent et que la fréquence des feux de forêt augmente [Kasischke et al., 2005].

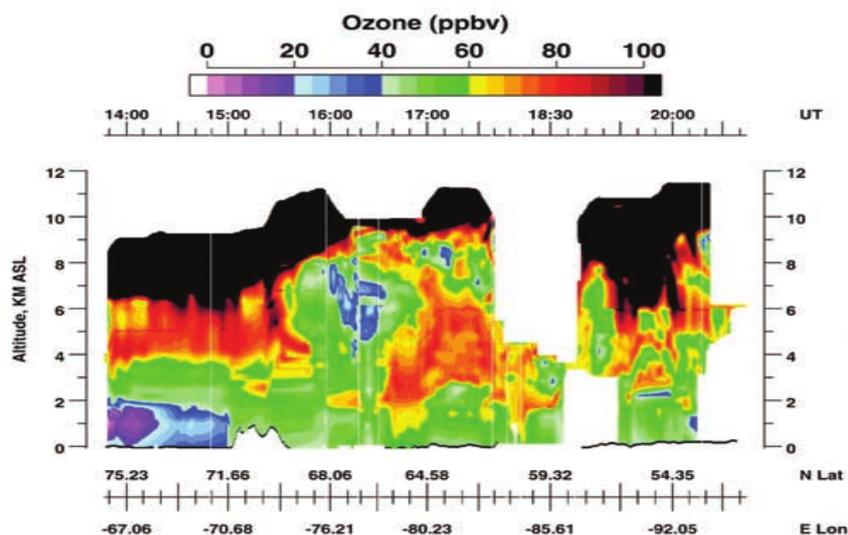


FIGURE 1.8 – Distribution d'ozone sur le vol entre Thule, Groenland et Winnipeg, Canada le 22 mai 2000. [Browell et al., 2003]

1.4.4 Aspects saisonniers du transport des aérosols et de l'ozone.

Formation des brumes hivernales.

L'hiver, la température en surface est extrêmement basse, ce qui conduit à une stratification thermique très stable avec des épisodes d'inversion de température en surface très fréquents [Bradley et al., 1992]. Ces conditions entraînent une réduction des échanges turbulents et donc des dépôts secs. On observe la brume arctique spécialement dans la basse troposphère [Shaw, 1995]. Les premières études ont établi que la brume arctique se produit régulièrement en hiver et de façon maximale au début du printemps, avec le nombre et l'épaisseur des brumes augmentant avec la saison [Scheuer et al., 2003]. La figure 1.9(a) montre bien l'augmentation des sulfates et des nitrates l'hiver et le printemps en Arctique.

En hiver, les surfaces de température potentielle constante forment un "dôme", avec les valeurs minimales situées dans la couche limite arctique. Cette configuration isole la basse troposphère arctique du reste de l'atmosphère par une barrière de transport, qui peut se localiser à des latitudes jusqu'à 45°N, au dessus de l'Amérique du nord et de l'Eurasie (Fig.1.10). Les météorologistes ont établi que pour faciliter le transport isentropique, une région source de pollution doit avoir les mêmes faibles températures potentielles que les couches formant la brume arctique [Carlson, 1981, Iversen, 1984, Barrie, 1986]. Cette condition favorise les sources provenant du nord de l'Eurasie et du nord-est du continent Américain comme principale source de la brume arctique.

Les masses d'air du nord-est américain sont caractérisées par des ascendances au dessus de l'Atlantique Nord, causées par les « conveyor belt » des régions frontales et peuvent redescendre ensuite en Arctique via l'anticyclone thermique [Stohl, 2005]. L'air connaît un

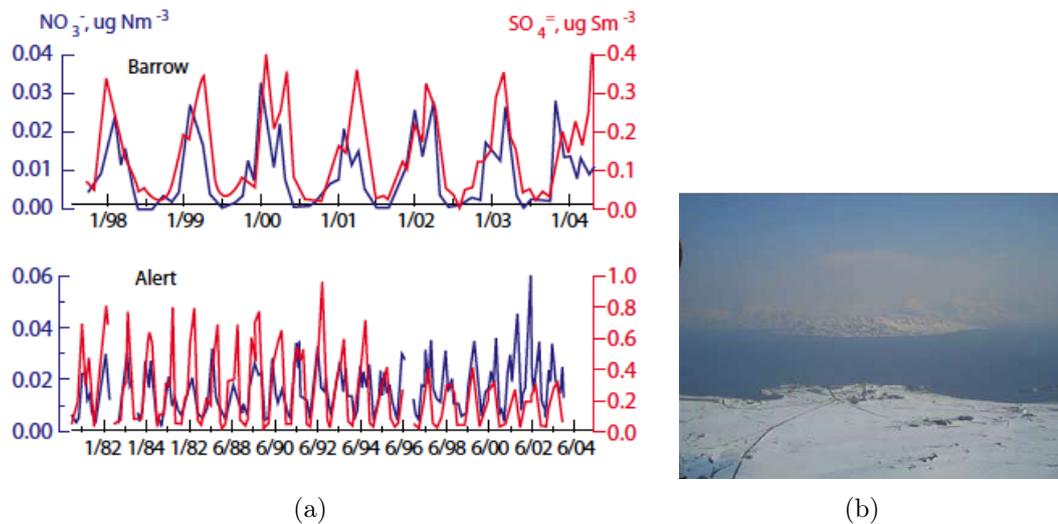


FIGURE 1.9 – (a) Série temporelle de la moyenne mensuelle de la concentration en particules de sulfate et nitrate à Barrow, Alaska (haut) et Alert, Canada (en bas) montrant une augmentation pendant l'hiver et le début du printemps [Quinn et al., 2007]. (b) Vue de la station scientifique du Zeppelin pendant un événement de fumée au printemps 2006. Image d'Ann-Christine Engvall [Stohl et al., 2007]

refroidissement diabatique lors de son transport au dessus des terres recouvertes de neige et de glace, près du front polaire [Klonecki et al, 2003], ce qui lui permet de concentrer les polluants sur de faibles épaisseurs au dessus de la surface (1-2 km). Etant donné le temps du transport concernant la pollution émise au nord de l'Amérique et de l'Asie, combiné à la durée de vie de l'aérosol dans l'atmosphère et les dépositions potentielles provoquées par les précipitations, Stohl (2006), estime que les émissions européennes contribuent aussi à la pollution dans les basses couches arctiques et donc à la formation des brumes. En effet, les émissions européennes se trouvent relativement, aux hautes latitudes et peuvent être directement injectées dans le dôme polaire, particulièrement, lorsque l'activité ondulatoire du front polaire se déplace vers le sud.

Export de pollution estivale.

L'été, les conditions météorologiques en Arctique changent de façon significative. L'anticyclone thermique au dessus du pôle disparaît ce qui assure un meilleur mélange des masses d'air sur toute la verticale. De plus, l'été, le front arctique est confiné à des plus hautes latitudes que l'hiver (Fig.1.10). Ainsi, les masses d'air riches en aérosols provenant des continents seront bien mieux mélangées qu'en hiver. Par conséquent on n'observe pas de brume arctique l'été comme le montre la figure 1.11 [Klonecki et al, 2003].

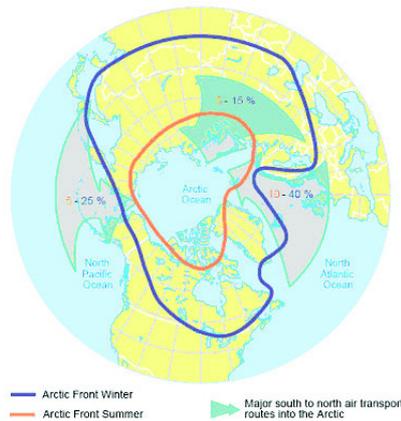


FIGURE 1.10 – Position moyenne des masses d'air arctiques l'hiver (janvier) et l'été (juillet) [AMAP, 2008].

La figure 1.11 montre une simulation du rapport de mélange mensuel moyen zonal et en altitude de CO en janvier, avril et juillet [Klonecki et al, 2003]. On voit qu'en janvier dans les hautes latitudes ($>70^{\circ}\text{N}$) une forte concentration de CO dans la couche limite (200 ppv en surface et 180 ppv à 3 Km) ce qui correspond au début de formation de la brume arctique. En Avril, on commence à avoir une plus grande homogénéisation en hauteur de CO mais avec une concentration supérieure à 130 ppv sur une hauteur de 5 Km. Ceci illustre bien le pic printanier de brume arctique. Enfin, le CO est plus dispersé en été sur toute la hauteur de la troposphère avec des valeurs comprises entre 75 et 85 ppv. Ce dernier cas de figure est très important pour les gaz dont l'impact radiatif se situent principalement sur la totalité de la troposphère comme l'ozone et les aérosols. Par ailleurs, même si la zone 75°N - 90°N est moins sensible en surface aux émissions, la région 65°N - 75°N est toujours soumise aux dépôts d'aérosols carbonnés sur la glace avec ce que cela implique sur l'impact des feux boréaux sur la fonte des glaces.

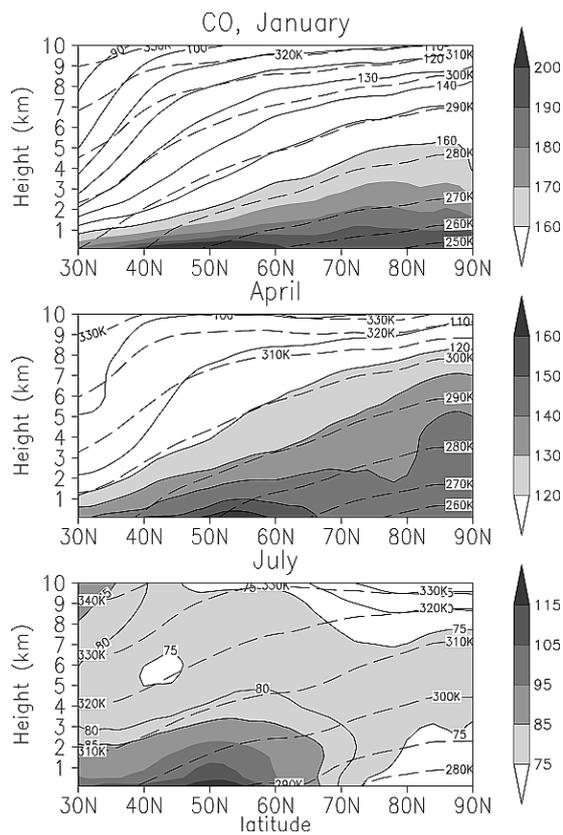


FIGURE 1.11 – Moyenne mensuelle et zonale du rapport de mélange de CO modélisé pour Janvier, Avril et Juillet en ppv (ligne solide et zone ombrée). Les lignes en tirées représentent les isentropes [Klonecki et al, 2003].

Exemple d'étude sur la variabilité saisonnière d'aérosol en Arctique par le modèle HTAP.

Des simulations globales "multi-modèle" du Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollution (HTAP) ont caractérisé l'importance relative des émissions provenant de différentes régions sources ayant une répercussion selon la saison sur l'Arctique [Shindell et al., 2008]. Les sources considérées incluent l'Europe, l'Amérique du nord, l'est et le sud de l'Asie (Fig. 1.12). Ces simulations calculent pour chaque modèle la sensibilité de



FIGURE 1.12 – Les quatre régions sources, Europe, Asie du sud, Asie de l'est, Amérique du nord, considérées par l'étude HTAP.

l'Arctique (changement dans les rapports de mélange par unité d'émission). Les régimes russes ne sont pas pris en compte mais la sensibilité est similaire à celle de l'Europe. Il a été montré que :

- La plus grande contribution en moyenne annuelle ou saisonnière, concernant les aérosols sulfatés et le carbone noir ("black carbon", BC), sur la surface de l'Arctique, est européenne (Fig 1.13).
- Au voisinage de la tropopause (250hPa), l'abondance de sulfate ainsi que de BC est dominé par les émissions asiatiques (sud et est).
- Concernant la moyenne troposphère (500hPa), la situation est plus complexe. Les émissions européennes contribuent majoritairement, en moyenne annuelle et saisonnière, à l'abondance de sulfate. Pour les BC , les émissions asiatiques (sud et est) dominent le printemps, sont équivalentes aux émissions européennes l'hiver et l'automne et sont, enfin, plus faibles l'été.
- l'Amérique du nord piloterait les niveaux d'ozone via leur émissions de NO_x , dans l'ensemble de la troposphère arctique.

D'autres études comme celles de Stohl, (2006) et Shindell et al. (2008) rapportent que les émissions européennes ont le plus grand impact près de la surface arctique, avec l'apport d'aérosols sulfatés et de BC alors que l'impact des émissions asiatiques se font plus ressentir dans la moyenne troposphère.

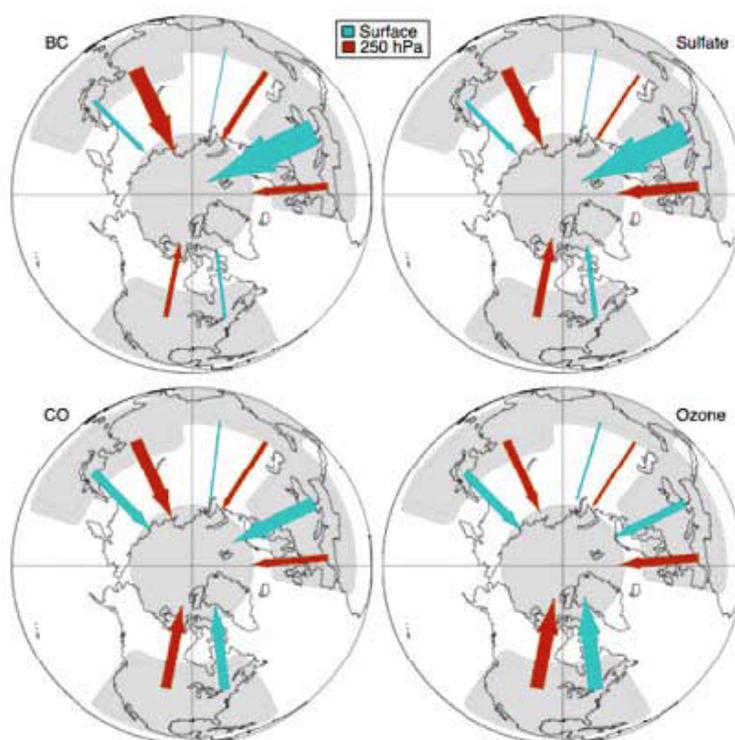


FIGURE 1.13 – Moyenne annuelle de l'importance relative des différentes sources d'émissions sur la surface et la haute atmosphère arctique pour les espèces, BC, CO, sulfates et ozone.

1.4.5 Impact radiatif lié aux aérosols et à l'ozone en Arctique.

L'impact des polluants à courte durée de vie comparé à celui du CO_2 est représenté par la figure 1.14. Globalement, la hausse de température liée aux polluants représente 70% de celle due au CO_2 . Pour les régions arctique, le rapport monte à 80%. La réponse en température de l'atmosphère associée au BC (forçage estimé à $1Wm^2$) s'élève à $0.15^\circ C$ [IPCC, 2007]. Cette réponse est sûrement sous-estimée, car l'IPCC (2007) exclue l'augmentation du forçage liée au mélange interne du BC avec d'autres types d'aérosols [Ramanathan et Carmichael, 2008]. De plus, le forçage atmosphérique est sensible au contenu en BC dans les aérosols à cause de son effet sur l'albedo de surface s'il y a déposition. Il est intéressant de noter que la contribution de l'ozone sur l'augmentation des températures est, au moins, aussi importante sur les régions arctiques qu'aux moyennes latitudes, alors que les concentrations y sont plus faibles.

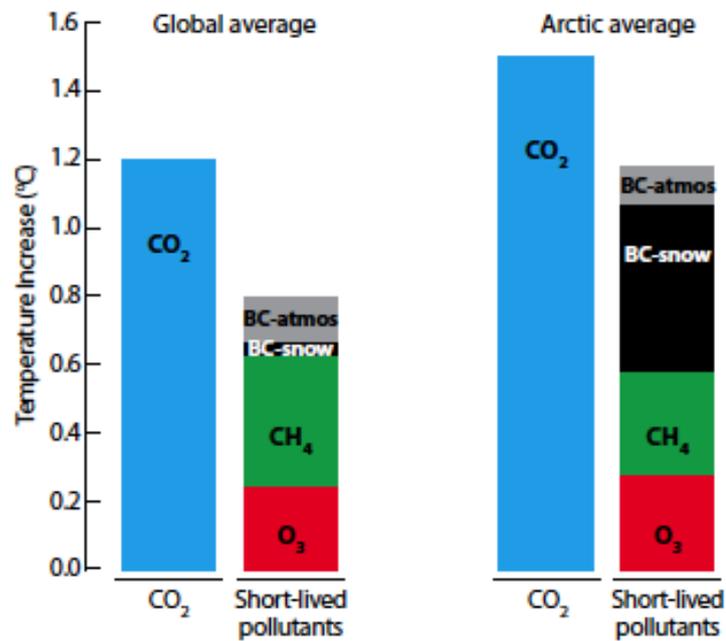


FIGURE 1.14 – Moyenne annuelle de l'augmentation de la température liée au CO_2 et aux différents polluants à courte durée de vie depuis l'air pré-industrielle. Moyenne globale (basée sur les données de l'IPCC (2007)) à gauche, et dans les régions arctiques à droite (données issues de [Quinn et al., 2008]). A noter, que le refroidissement dû à certains polluants n'est pas représenté ici.

Les figures 1.15 et 1.16 résument, de façon simplifiée, les différents aspects saisonniers du rayonnement, les transports de polluants et les forçages radiatifs résultants.

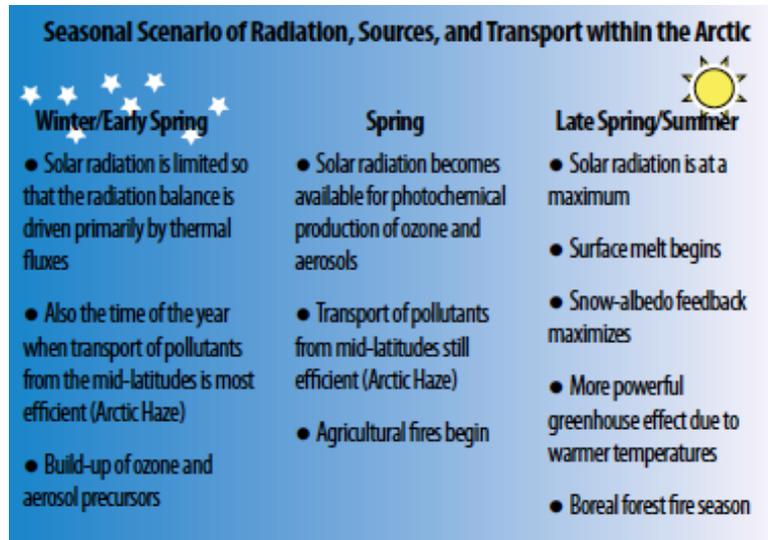


FIGURE 1.15 – Les différents scénarios de rayonnements, sources, et transport en Arctique [Quinn et al., 2008].

L'ampleur du forçage par chacun des polluants, dépend de la saisonnalité d'un certain nombre de facteurs liés entre eux comme les rayonnements, les précipitations, l'albédo de surface, de la neige, la couverture de glace et le transport des polluants vers l'Arctique. La table présentée dans la figure 1.17 présente les estimations en moyenne saisonnière des différents forçages en surface F_S et au sommet de l'atmosphère (F_{TOA})¹ et les réponses en températures (ΔT_S) pour chacun des agents. Pour l'ozone et le méthane, seul F_{TOA} intervient, mais pour l'aérosol, l'impact est important aussi en surface à cause de l'atténuation par diffusion et absorption du rayonnement atteignant la surface. Ce dernier est toujours négatif sauf pour les dépôts de BC qui augmentent le pouvoir absorbant de la surface.

On distingue, dans le paragraphe suivant, les estimations saisonnières moyennes des forçages radiatifs ainsi que les réponses en température de la surface dues aux polluants à courte durée de vie présents en Arctique.

1. TOA : "top of atmosphere" littéralement, sommet de l'atmosphère

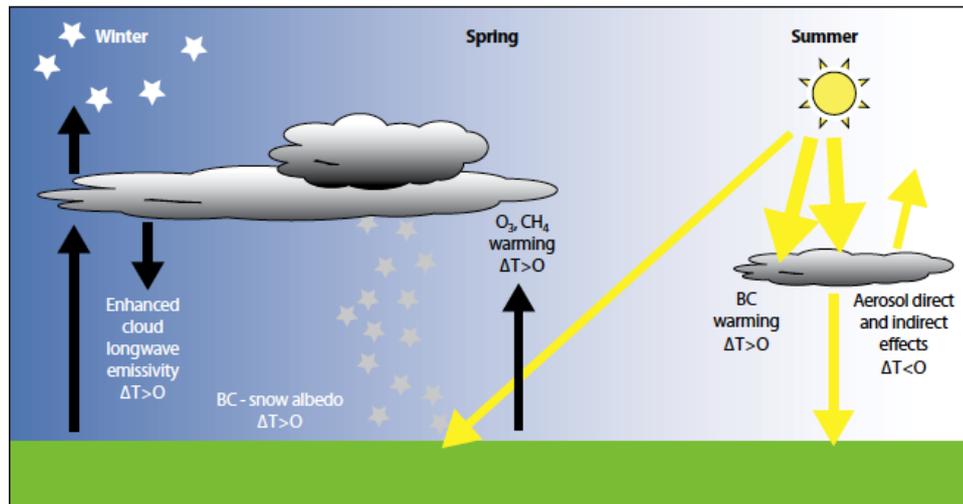


FIGURE 1.16 – Mécanisme de forçage dans l’environnement arctique résultant du transport des gaz vers les pôles des moyennes latitudes en phase particulaire. ΔT indique la réponse de la surface en température [Quinn et al., 2008].

Forçages liés aux gaz. Le forçage du méthane est maximum au printemps (0.45 W.m^2) et l’été (0.55 W.m^2), lorsque les températures de surfaces sont les plus chaudes, d’où, un pouvoir d’effet de serre plus important. Le forçage imputé à l’ozone troposphérique est maximum au printemps (0.34 W.m^2), Fig. 1.17) quand

- le transport d’ozone est efficace,
- les précurseurs d’ozones persistent due à l’accumulation hivernale,
- les pertes photochimiques sont faibles.

L’été, le forçage n’est pas négligeable (0.14 W.m^2), en particulier lorsque les feux boréaux et agricoles sont fréquents, augmentant ainsi, les niveaux d’ozone en Arctique. Mais c’est l’hiver que l’ozone et le méthane contribuent le plus au réchauffement de la surface avec respectivement, 0.43°C et 0.34°C (Fig.1.18) alors que leur forçage est minimum (0.13 W.m^2 pour l’ozone et 0.29 W.m^2 pour le méthane). Cette réponse, en décalage avec le forçage, est piloté par des forçages dans les autres régions du globe et le transport de chaleur qui en résulte.

Forçages liés aux brumes hivernales. En hiver et au début du printemps, le rayonnement solaire reste faible et le bilan radiatif est essentiellement lié aux flux thermiques. Les interactions entre les brumes de pollution arctiques et les nuages fins présents à cette période de l’année conduisent à une augmentation de l’émissivité dans les grandes longueurs d’onde . Les observations à long terme montrent que le forçage en surface résultant est positif et s’estime entre 3.3 W.m^2 et 5.2 W.m^2 , ce qui, engendre un réchauffement de la surface entre 1°C et 1.6°C [Garrett et Zao, 2006]. On note une compensation entre cette réponse et celle liée aux effets directs des aérosols. En effet ceux-ci contribuent à un refroidissement atteignant jusqu’à 1.4°C l’hiver.

Forcing Agent	Season	F_S ($W m^{-2}$)	F_{TOA} ($W m^{-2}$)	$F_{TOA}-F_S$ ($W m^{-2}$)	ΔT_S^a ($^{\circ}C$)
Tropospheric Aerosols – Direct Effect ^b					
Total* Fossil + Bio Fuel (Biomass Burning) *SO ₄ ⁻ + OC + BC	Winter	-0.04 (-0.001)	0.08 (0.004)	0.12 (0.005)	-1.4 ^c
	Spring	-0.72 (-0.1)	0.92 (0.17)	1.6 (0.27)	-0.93 ^c
	Summer	-0.93 (-0.43)	0.11 (0.16)	1.0 (0.59)	-0.47 ^c
	Fall	-0.14 (-0.07)	0.08 (0.04)	0.22 (0.11)	-1.1 ^c
SO ₄ ⁻ Fossil Fuel	Winter	-0.006	-0.01	-0.006	
	Spring	-0.26	-0.32	-0.06	
	Summer	-0.50	-0.54	-0.04	
	Fall	-0.07	-0.08	-0.01	
OC Fossil+Bio Fuel (Biomass burning)	Winter	-0.003 (0)	0 (0)	0.003 (0)	
	Spring	-0.06 (-0.05)	0.03 (0.02)	0.09 (0.07)	
	Summer	-0.04 (-0.24)	-0.01 (-0.09)	0.03 (0.15)	
	Fall	-0.008 (-0.04)	-0.001 (-0.02)	0.007 (0.02)	
BC Fossil + Bio Fuel (Biomass burning)	Winter	-0.03 (-0.001)	0.09 (0.004)	0.12 (0.005)	
	Spring	-0.39 (-0.05)	1.2 (0.15)	1.6 (0.20)	
	Summer	-0.39 (-0.19)	0.66 (0.25)	1.0 (0.44)	
	Fall	-0.07 (-0.03)	0.16 (0.05)	0.23 (0.08)	
Tropospheric Aerosols – Indirect Effects					
Total* Fossil + Bio Fuel Cloud albedo + cloud cover SW, LW, SW + LW *SO ₄ ⁻ + OC + BC	Winter	-0.04, 0.24, 0.2 ^d	0.07, -0.1, -0.03 ^e	0.11, -0.34, -0.23	-0.77 ^f
	Spring	-3.0, 1.9, -1.1	0, 0.1, 0.1	3.0, -1.8, 1.2	-0.68 ^f
	Summer	-12.2, -0.5, -13	6.6, -0.5, 6.1	19, 0, 19	-0.45 ^f
	Fall	-0.4, -0.1, -0.5	0.49, -0.9, -0.41	0.89, -0.8, 0.09	-0.89 ^f
Cloud longwave emissivity	Winter	+3.3 to 5.2 ^g			1 to 1.6 ^g
Black carbon aerosol – Snow Albedo					
BC Fossil + Bio Fuel	Winter	0.02 ^h			0.27-0.61 ^h
	Spring	0.53 ^h			0.36-0.76 ^h
	Summer	0.21 ^h			0.24-0.59 ^h
	Fall	0.002 ^h			0.31-0.76 ^h
Tropospheric Ozone – GHG warming + SW absorption ⁱ					
O ₃ Fossil + Bio Fuel and Biomass burning	Winter		0.13		0.43
	Spring		0.34		0.31
	Summer		0.14		0.11
	Fall		0.24		0.26
Methane – GHG warming ^j					
Methane	Winter		0.29		0.34
	Spring		0.45		0.27
	Summer		0.55		0.15
	Fall		0.34		0.35

FIGURE 1.17 – Comparatif saisonnier entre magnitude du forçage radiatif et la réponse en température de la surface causée par les polluants à courte durée de vie en Arctique (60°N et 90°) [Quinn et al., 2008].

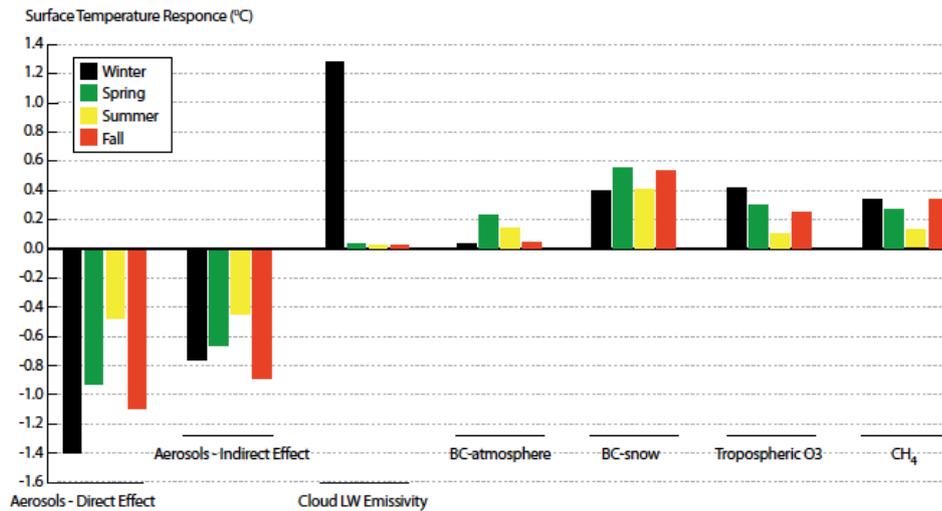


FIGURE 1.18 – Moyennes saisonnières des réponses en température de la surface entre les latitudes 60°N et 90°N basées sur les résultats de la Fig 1.17. Les valeurs pour l'émissivité dans les grandes longueurs d'onde des nuages (Cloud Longwave Emissivity sur la figure) ne sont pas saisonnières mais tiennent compte uniquement des épisodes où coïncident aérosols de pollution et nuages. Les valeurs de F_S et ΔT_S sont représentées dans le cas où les valeurs sont reportées dans la Fig 1.17, [Quinn et al., 2008].

Forçages liés aux BC et aux modifications de l'albédo de surface. La déposition de la suie sur la neige et la glace engendre un forçage radiatif additionnel [Clarke et Noone, 1985]. En effet, la suie absorbe le rayonnement solaire à la surface. Il est aussi estimé [Quinn et al., 2008] que les dépositions de suie sur les surfaces neige/glace très réfléchissantes, entraînent une diminution de l'albédo et un forçage positif de surface s'élevant à 0.53 W.m^2 au printemps, période où le forçage est maximum [Flanner et al., 2007], La réponse en température de la surface associée à ce forçage est de 0.56°C et reste présente toute l'année du fait du rôle régulateur de la couverture de glace.

Intéactions aérosols-nuages. Les forçage radiatifs sont aussi issus des interactions aérosol-nuage. Des mesures effectuées à Barrow en Alaska, sur une période de 4 ans indiquent que les épisodes d'Arctic Haze produisent une grande concentration de gouttellettes de petites tailles [Garrett et al., 2004].

Au dessus de l'océan, lorsque le soleil est haut, l'effet indirect des aérosols aux ondes courtes est censé refroidir la surface mais pour un soleil bas au dessus des terres brillantes arctique, l'effet indirect des ondes longues devrait dominer. En effet, lorsque les concentrations de gouttellettes des nuages fins augmentent, le nuage devient plus efficace au piégeage et aux réémissions des ondes longues [Garrett et Zao, 2006].

L'augmentation des gouttellettes dans les nuages due aux interactions aérosols-nuages peut aussi mener à une augmentation significative de la couverture nuageuse car une diminution en taille des gouttes implique une baisse des précipitations et donc un allongement de la durée de vie du nuage [Albrecht, 1989]. Enfin, l'augmentation de la concentration en

gouttes dans les nuages peut être associée à une diminution du taux de formation de glace en phase mixte ce qui réduit l'assèchement du nuage et augmente son émissivité dans les ondes longues [Girard et al., 2005]. Cependant, les mécanismes de formation des nuages en phase mixte sont aujourd'hui mal compris [Fridlin et al., 2007].

Lubin et Vogelmann, (2007) ont effectué des simulations de transfert radiatif afin d'évaluer l'importance relative du flux descendant résultants des effets indirects aux ondes courtes et longues induits par les aérosols. Ainsi, durant les mois de mars et d'avril, le rôle des flux descendants aux ondes courtes et longues sont comparables alors que pour les mois de mai et de juin, celui des flux aux ondes courtes dominant.

Relation saisonnalité du forçage-réponse en température de la surface. Comme F_S est un forçage instantané, les réponses en température s'effectuent après l'équilibre thermique entre la surface et l'atmosphère plus chaude. Viennent s'ajouter des effets additionnels, comme l'extension de la couverture de glace/neige et une diminution de la pression au niveau de la mer. L'impact des aérosols sur la circulation et la cryosphère peut contrôler le décalage entre le maximum du forçage (printemps/été) et le maximum de réponse en température (l'hiver).

Des modélisations récentes indiquent que lors de l'été boréal, la réponse en température de l'Arctique est bien corrélée avec le forçage global et le forçage ayant lieu en Arctique. Cependant, durant les autres saisons, la réponse de la surface en température suit de plus près, le forçage de l'hémisphère nord extratropical que celui du forçage local arctique. Ceci indique l'importance de l'impact des régions distantes sur le climat arctique.

Ce phénomène divergent concernant le maximum de forçage et le minimum en réponse de température risque de disparaître en même temps que la couverture de glace sur l'océan car la hausse des températures de l'océan Arctique reste limitée en raison de la présence de la couverture de glace.

La figure 1.19 montre les réponses saisonnières en température de la surface arctique, induite par des polluants à courte durée de vie ayant un pouvoir réchauffant comparé aux GES. En dépit des nombreuses incertitudes engendrées par les modèles, les contributions potentielles des polluants gazeux à l'accélération du changement climatique arctique sont élevées. On remarque que le réchauffement est principalement dû aux GES excepté en hiver où la réponse associée aux aérosols atteint 2.5°C . Néanmoins, comme on a vu précédemment, ce maximum peut être la résultante des forçages radiatifs ayant lieu à d'autres saisons.

La figure 1.18 montre un refroidissement de la surface engendré par les aérosols troposphériques. Sur une analyse saisonnière, ce refroidissement paraît atténuer le réchauffement lié aux polluants. Certaines sources, comme les feux de biomasses, engendrent des panaches, à haute teneur en carbone organique comparé à celle en BC. Dans ce cas, le résultat peut être un refroidissement net. Cependant, les calculs sur le forçage direct de la figure 1.17 suggère que les composés organiques carbonés dans les panaches ont un effet neutre sur la réponse en température tandis que le BC contribue à une réponse positive. La réponse en température liée à l'effet indirect reste plus incertaine.

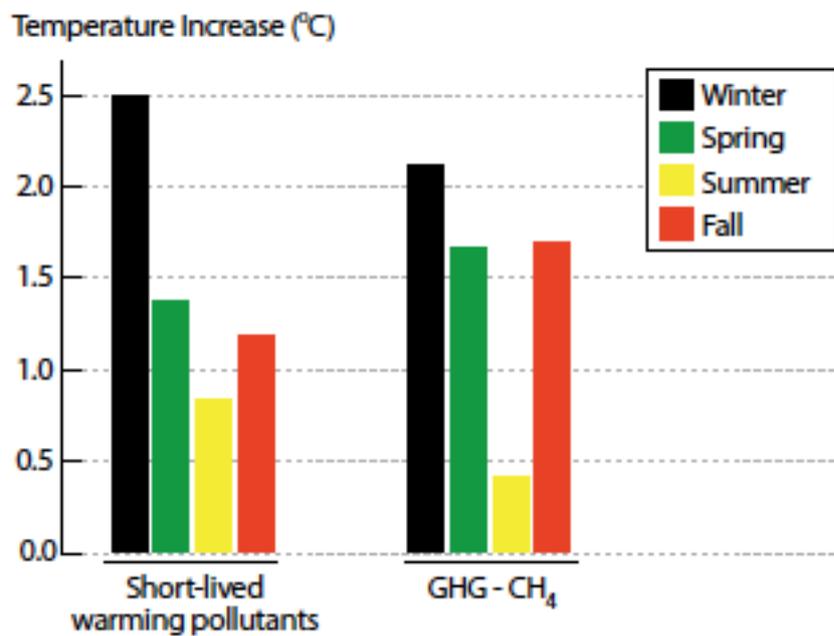


FIGURE 1.19 – Moyenne saisonnière des valeurs des reponses en température à la surface entre les latitudes 60°N et 90°N basé sur les résultats de la Fig 1.17 pour les polluants à courte durée de vie produisant un réchauffement en surface (aérosols,forçages dus aux émission aux grandes longueurs d'onde des nuages, BC, ozone troposphérique, méthane) comparé au GES mélangés excepté le méthane (GHG-CH₄, [Quinn et al., 2008]).

Chapitre 2

Campagne de mesures POLARCAT

2.1 Introduction

Le projet POLARCAT, (Polar Study using Aircraft, Remote Sensing, Surface Measurements and Models, of Climate, Chemistry, Aerosols, and Transport) est un ensemble de campagnes de mesures ayant eu lieu lors de l'année polaire internationale, en 2008. L'activité POLARCAT associe des chercheurs de 18 pays et regroupe des observations à partir de différentes plate-formes (avion, ballon, station sol, satellite), des analyses de données et de la modélisation numérique pour quantifier le transport des composés chimiques, des aérosols et des métaux lourds vers l'Arctique.

Les objectifs scientifiques de cet ensemble de campagnes de mesures sont :

- La quantification des mécanismes de transport contrôlant la distribution des photo-oxydants, des aérosols et des métaux lourds dans la troposphère arctique en hiver/printemps (brumes arctiques) et en été (intense pollution des régions voisines : feux, oxydants)
- La quantification des propriétés optiques des aérosols et de leur effet radiatif direct et indirect, (formation des nuages, impact sur l'albédo de surface et évolution couche de neige et de glace).
- Contribution des feux de forêts boréaux sur la composition de l'atmosphère arctique comparée à celles d'autres sources anthropiques (par exemple l'Asie) incluant l'impact de la déposition des suies sur l'albédo de la neige ou de la glace et celui de la pyro-convection sur la stratosphère.
- La détermination des processus chimiques contrôlant la composition de l'atmosphère arctique incluant la quantification des sources et puits de l'ozone et des oxydes d'azote.
- L'étude des processus contrôlant la variabilité interannuelle de la composition atmosphérique en Arctique, les changements des facteurs d'émission et les rétroactions chimie-climat.

Pour une description détaillée des différentes campagnes POLARCAT, on pourra se référer au site :<http://www.polarcat.no/>.

Dans le cadre de POLARCAT- France, la contribution française à ce programme a été

de deux campagnes de mesures aéroportées en 2008 effectuées pour la première à Kiruna (au nord de la Suède) en mars-avril et pour la seconde à Kangerlussuaq (Groenland) en juillet. L'avion utilisé était un ATR-42, avion bi-turbo propulseurs de l'unité SAFIRE (Service des Avions Français Instrumentés pour la Recherche en Environnement) du CNRS / Météo-France, équipé d'instruments de télédétection (lidar, radar) et de mesures in-situ de concentration en gaz (CO , O_3), de propriétés physiques et optiques des aérosols et des nuages. Pour la campagne de printemps, la stratégie des vols a privilégié les mesures d'aérosol dans la moyenne troposphère et l'impact des aérosols sur la formation des nuages.

L'étude de la campagne de printemps résultant de l'objectif principal de cette thèse a donc consisté à travailler sur l'origine et l'évolution de l'aérosol, notamment au travers de ses propriétés optiques déduites des mesures du lidar LNG. En effet, l'analyse des mesures lidar aérosols pour la campagne d'été n'a pas montré une forte variabilité des propriétés optiques des aérosols au Groenland. La figure 2.1 indique les traces de la douzaine de vols effectués lors de la campagne de printemps.

On décrira dans cette partie les différents vols effectués entre le 30 mars et le 11 avril 2008, leur contexte météo, l'origine des masses d'air rencontrées, ainsi que les instruments présents à bord de l'ATR-42.

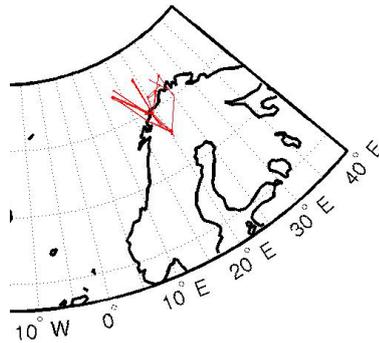


FIGURE 2.1 – Trace des vols effectués lors des campagnes printemps POLARCAT France entre le 30/03/2008 et le 11/04/2008.

2.2 Instruments à bord de l'ATR-42

2.2.1 Mesures In-situ

Divers instruments ont été utilisés lors des deux campagnes afin de caractériser les masses d'air d'un point de vue microphysique et chimique. Ainsi, pour déterminer les concentrations en gaz CO , un analyseur de type 48CTL de Thermo Environmental Instrument fut installé sur l'appareil. C'est un instrument basé sur le principe de l'absorption infrarouge par la bande principale d'absorption du CO , à $4.67 \mu\text{m}$ [Nedelec et al., 2003]. La sensibilité est de 5 ppbv pour une précision de 5% et un temps de réponse de 30 secondes. La concentration en CO est particulièrement importante pour indiquer si la masse d'air échantillonnée est influencée par des processus de combustion datant de 10-20 jours. La mesure d'ozone est déduite d'un photomètre UV avec une précision de 1-2 ppb et un temps de réponse d'une seconde. La figure 2.2 montre un exemple de mesures des concentrations d'ozone et de CO pendant le vol du 11 avril. Ces mesures permettent de mettre en avant

- la composition des panaches traversés comparé à l'air clair arctique. Dans ce cas, on note des variations importantes de concentration en CO , de l'ordre de 100 ppb entre 10h00 et 11h30 et vers 12h30 (les valeurs minimales observées ce jour là, correspondant à la concentration en CO pour la troposphère arctique "propre", sont de l'ordre de 130 ppb). Ceci témoigne de la traversé de masses d'air pouvant présenter des aérosols de combustion ayant été transportés à longue distance jusqu'en Scandinavie.
- des intrusions stratosphériques caractérisées, à la fois par une augmentation en concentration d'ozone et une baisse en concentration de CO .
- les soulèvements de la couche limite (PBL) marqué par une diminution en concentration d'ozone comparée à la teneur dans la troposphère libre. Dans cet exemple, la concentration d'ozone dans la PBL (explorée entre 11h45 et 12h15) s'élève entre 20 et 30 ppb alors que la concentration moyenne dans la troposphère libre est autour de 50-60 ppb. Ceci est en accord avec la perte d'ozone liée à des processus chimiques près de la surface arctique à cette période de l'année.

Les concentrations en aérosols ont été mesuré en combinant plusieurs instruments.

- Le FSSP-100 est un granulomètre qui dimensionne sur 16 classes de diamètre les gouttelettes entre 2 et $47 \mu\text{m}$.
- le CPC est un compteur de noyaux de condensation qui détecte toutes les particules dont le diamètre est supérieur à son diamètre limite de détection. Les diamètres limites de détection définis à 50% d'efficacité de comptage sont respectivement de 10 nm pour le CPC3010 et 25 nm pour le CPC3025 . Le flux d'aérosol prélevé passe par une chambre chauffée (saturateur) contenant du butanol sous forme liquide pour augmenter la taille de l'aérosol. Les particules sont ensuite détectées optiquement en étant éclairées par une source lumineuse laser et diffusant suivant la théorie de Mie.
- Une sonde spectromètre des aérosols, "Passive Cavity Aerosol Spectrometer Probe" (PCASP FSP-200) qui donne le nombre de particules dans 30 classes de taille entre 0.1 et $3 \mu\text{m}$. Le PCASP est composé d'un faisceau laser et d'un système optique.

Les particules qui traversent le faisceau laser diffusent de la lumière dans toutes les directions. La dimension de la particule est déduite de la mesure de l'intensité lumineuse en utilisant la théorie de Mie dans l'hypothèse d'une particule sphérique d'indice de réfraction 1.58. Les incertitudes associées au PCASP ont été estimés à 10%. Notons que la différence entre l'intégrale du PCASP et les particules détectées par le CPC permet de quantifier la fraction des particules fine ($<100\text{nm}$).

- un "Scanning Mobility Particle Sizer" (SMPS) composé d'un "Differential Mobility Analyser" (DMA) et d'un compteur de noyau de condensation. Le DMA permet de séparer les particules en fonction de leur diamètre de mobilité électrique. L'air, préalablement débarrassé des plus grosses particules ($>1\mu\text{m}$) grâce à un impacteur, est chargé électriquement grâce à une source radioactive de Kr85. Un champ électrique permet de séparer les particules porteuses de charges identiques (théorie de séparation des charges) en fonction de leur mobilité électrique donc de leur diamètre. Un CPC 3010 placé en sortie permet de compter le nombre de particules sélectionnées par le DMA. En variant l'amplitude du champ électrique dans la colonne (entre 0 et 10000V), on peut balayer une large gamme de diamètre de particules (de 10 à 300 nm), avec une résolution temporelle de 3 minutes.

La figure 2.3 montre une coupe méridienne de la concentration en aérosol avec le CO le long d'une portion du vol, effectuée sur un palier à 5000 mètres, du 10 avril. Ce type de graphe a été réalisé pour chaque vol. Dans cet exemple, en dessous de 70.4°N , les masses d'air rencontrées sont plus riches en CO avec des valeurs autour de 180 ppb contre 150 160 ppb au nord. On distingue aussi une plus grande concentration en particules comme le montre les plus forts signaux pour le compteur optique et le PCASP. Notons aussi que les variations relatives des concentrations de CO sont bien corrélées à celles du PCASP, ce qui traduit une présence de plus grosses particules dans les masses d'air aux plus grandes teneurs en CO.

2.2.2 Télédétection Lidar LNG

Le lidar LNG (Leandre 1 nouvelle génération) est un lidar rétrodiffusion à trois longueurs d'onde : 355, 532 et 1064nm. Le principe du lidar consiste à envoyer une impulsion laser dans l'atmosphère. Les molécules, les particules d'aérosols, les gouttelettes d'eau et les cristaux de glace présents sur le trajet du faisceau laser diffusent l'onde laser dans toutes les directions. Le télescope, dont l'axe optique est parallèle au trajet d'émission du laser, récupère le champ diffusé vers l'arrière (rétrodiffusion). En sortie du télescope, le signal rétrodiffusé est collecté sur un détecteur. Une description détaillée du principe lidar est faite dans l'Annexe B.

La polarisation est indispensable pour analyser les différences de forme de particules (sphérique contre non-sphérique) et LNG a été équipé de cette mesure. LNG fournit des profils de coefficient de rétrodiffusion total atténué aux trois longueurs d'onde. LNG permet aussi d'obtenir des profils verticaux de plusieurs paramètres optiques. tels que les rapports de diffusion à différentes longueurs d'onde, de rapport de couleur (rapport entre les coefficients de rétrodiffusion à 532 et 1064 nm) et de dépolarisation à 355nm qui

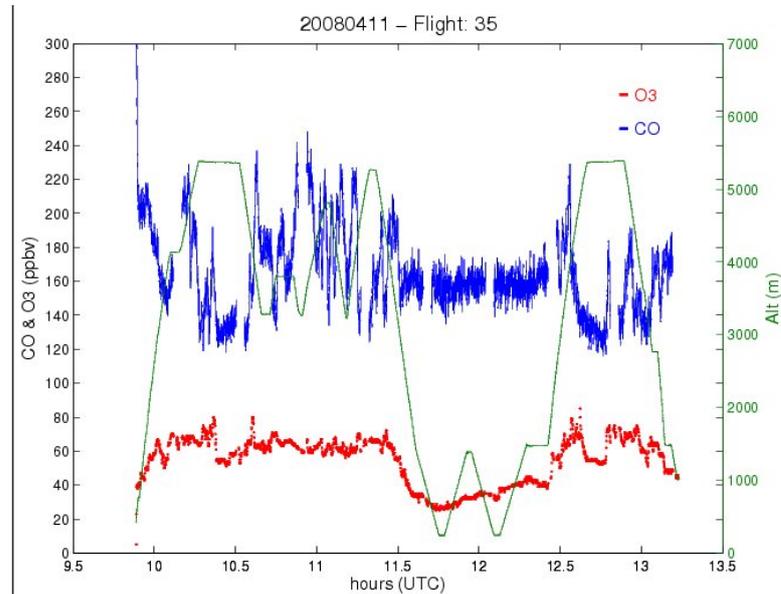


FIGURE 2.2 – Série temporelle sur les concentrations d’ozone (en rouge) et de CO (en bleu) mesurées lors du vol 35 du 11 avril 2008 par la sonde 48CTL. La courbe verte montre la trajectoire en fonction de l’altitude de l’avion.

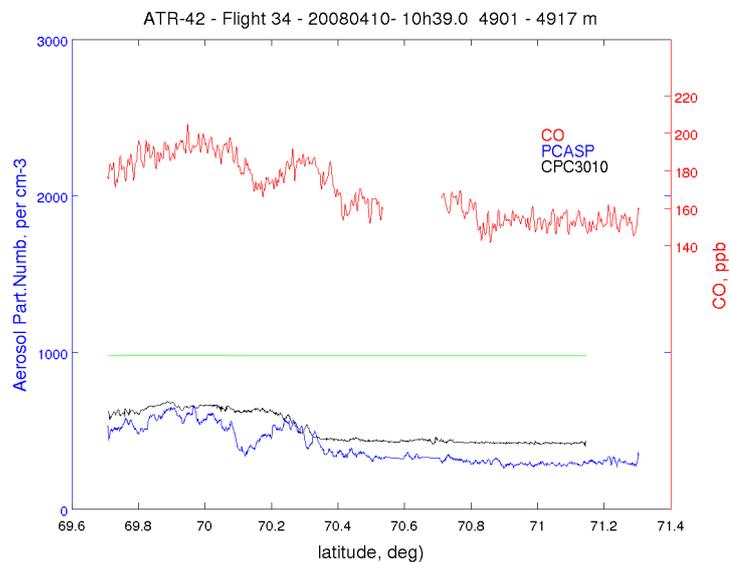


FIGURE 2.3 – Mesure du nombre de particules effectuée par le PCASP (courbe bleue) et le CPC3010 (courbe noire) pendant le vol 34 du 10 avril entre 69.8 °N et 71.2°N. Les valeurs de concentration de CO sont tracées en rouge et l’altitude de l’avion en mètres, divisée par un facteur 5, en vert.

seront détaillés dans le paragraphe suivant. LNG est une nouvelle version du lidar à rétrodiffusion aéroporté LEANDRE déjà utilisé dans plusieurs études sur la dynamique de l’atmosphère [Flamant et al.(1996), J. Pelon] et sur la caractérisation de l’aérosol [Pelon et al., 2002]. En terme de sécurité oculaire, l’énergie maximale permise à 355nm est 15000 fois plus importante que celle à 532nm. On peut donc travailler à énergie plus forte et à champ réduit ce qui permet d’augmenter le rapport signal sur bruit et de réduire les effets de la diffusion multiple. A 532 et 1064 nm, pour garder une distance de sécurité de 500 m en sortie de l’avion le champ à ces longueurs d’onde sera large, donc sensible au phénomène de diffusion multiple. Notons, que la géométrie de la mesure entraine une zone “aveugle“ à partir de la zone d’émission (où la mesure ne peut être faite) différente selon des longueurs d’onde. Ainsi, à 355 nm, elle est d’environ 500 mètres et elle est de l’ordre de 200 à 300 mètres à 532 et 1064 nm. Les longueurs d’onde à 532 et 1064 nm sont également les longueurs d’onde du lidar de CALIOP basé sur la plateforme CALIPSO. Nous avons plus particulièrement focalisé notre attention sur ces deux longueurs d’onde. Le canal à 355 nm sera utilisé principalement afin d’obtenir une mesure du coefficient de rétrodiffusion total atténué sur les deux polarisations (355_{\parallel} , 355_{\perp}). Les mesures à haute résolution spectrale sur le canal 355_{\parallel} n’ont pas pu être utilisées pendant cette campagne. Les caractéristiques du lidar LNG sont présentées dans le tableau 2.1

TABLE 2.1 – Caractéristiques du lidar LNG

Longueurs d’onde émises (nm)	355(\parallel et \perp)	532	1064
Énergie émise (taux réponse 20Hz)	50mJ	10mJ	80mJ
Divergence du laser	0.16mrd	4mrd	6.5mrd
Taille du spot @5km	0.8m	20m	33m
Largeur du filtre	5nm	0.2nm	1nm
Transmission Max.Filtre (%)	25	25	30
Diamètre du Télescope	30cm		
Échantillonnage temporelle et verticale	20 MHz ou 7.5 m		
Résolution verticale	30m (4points)		
Séparation horizontale (tir à tir)	4-5m (à la vitesse de l’ATR42)		
Résolution horizontale utilisé	450m (100 tirs)		

2.3 Paramètres optiques étudiés.

Dans ce paragraphe, j'exposerai les paramètres calculés à partir des coefficients de rétrodiffusion lidar et plus précisément de la connaissance du coefficient volumique de rétrodiffusion, β , à une longueur d'onde λ qui dépend des contributions moléculaires (Rayleigh) et aérosols :

$$\beta_\lambda(z) = \beta_{\lambda,m}(z) + \beta_{\lambda,a}(z) \quad (2.1)$$

où les indices, m et a représentent respectivement les contributions moléculaires et particulaires aux processus de rétrodiffusions. Un lidar à rétrodiffusion mesure en fait la puissance du signal rétrodiffusé et normalisé par l'énergie laser à une distance z, $P_\lambda(z)$, qui peut être relié à $\beta_\lambda(z)$ par l'équation suivante :

$$P_\lambda(z) = K_\lambda(\beta_{\lambda,m}(z) + \beta_{\lambda,a}(z)).T_{\lambda,m}(z)^2.T_{\lambda,a}(z)^2. \quad (2.2)$$

- K_λ : coefficient de calibration indépendant de l'altitude propre au système lidar. Il peut y avoir une faible dépendance avec le temps si les caractéristiques optiques du lidar changent (contrainte thermique, phases de montée et descentes rapides).
- T^2 représente la transmission optique sur le trajet aller-retour entre la zone diffusante à l'altitude z et le récepteur du lidar.

La transmission aller-retour pour chaque constituant, x, s'écrit :

$$T_x(z)^2 = \exp(-2\tau_x(z)) = \exp(-2 \int_0^z \sigma_x(z')dz'). \quad (2.3)$$

- τ_x : épaisseur optique,
- σ_x : coefficient d'extinction volumique.

La contribution de la diffusion moléculaire peut être estimée avec une bonne certitude en utilisant un modèle de densité atmosphérique. Lorsque la contribution des aérosols est négligeable à l'altitude, z_0 , et de préférence près du lidar pour conserver $\tau_x(z_0)$ faible. On peut déterminer la constante de calibration, K , à partir de la valeur de $P(z_0)$. En divisant $P(z)$ par la valeur obtenue de K on obtient le coefficient de rétrodiffusion atténué (c'est aussi le paramètre disponible dans les données niveaux 1 du lidar CALIOP), et en effectuant une normalisation par la contribution de la diffusion Rayleigh, on obtient le rapport de diffusion, $R(z)$.

$$R(z) = \frac{P(z)}{K\beta_{\lambda,m}(z).\exp(-2\tau_{\lambda,m}(z))} \approx 1 + \frac{\beta_{\lambda,a}(z)}{\beta_{\lambda,m}(z)} \quad (2.4)$$

Cette approximation est valable si et seulement si, l'épaisseur optique, $\tau_{\lambda,a}$ reste petit (<0.01), ce qui est le cas dans cette étude.

Lorsqu'un laser linéairement polarisé est émis dans l'atmosphère, la dépolarisation du coefficient de rétrodiffusion peut être mesurée par un système lidar ayant un polariseur installé devant le détecteur. Le rapport de diffusion, R , pour les signaux parallèles et croisé-perpendiculaires s'écrivent :

$$R_\perp(z) = 1 + \frac{\beta_{\perp,a}(z)}{\beta_{\perp,m}(z)} \quad R_\parallel(z) = 1 + \frac{\beta_{\parallel,a}(z)}{\beta_{\parallel,m}(z)} \quad (2.5)$$

Le ratio des deux coefficients de rétrodiffusion par l'aérosol avec 2 polarisations différentes, s'appelle le coefficient de dépolarisation volumique linéaire, δ_a , donné par :

$$\delta_a(z) = \frac{\beta_{\perp,a}(z)}{\beta_{\parallel,a}(z)} = \frac{R_{\perp}(z) - 1}{R_{\parallel}(z) - 1} \cdot \delta_m \quad \text{avec } \delta_m = \frac{\beta_{\perp,m}}{\beta_{\parallel,m}} \quad (2.6)$$

Dans notre étude, nous utilisons des lidar ayant des émissions polarisées et dépolariées à 355nm pour LNG et 532nm pour CALIPSO. Les coefficients de dépolarisation volumique pour CALIPSO sont fournis par des produits CALIOP de la NASA explicités dans l'annexe CALIPSO. Ainsi, au cours de cette étude, seules les dépolarisations issues de LNG ont été calculées.

Bucholtz (1995) décrit la dépendance en longueur d'onde pour la dépolarisation Rayleigh (à 355 nm $\delta_m=0.015$). Ce ratio dépend essentiellement de la précision absolue du coefficient de rétrodiffusion obtenue, le rapport du coefficient de rétrodiffusion total croisé dépolarié, sur le coefficient de rétrodiffusion total parallèle sera aussi calculé et appelé *pseudo dépolarisation*, δ défini comme :

$$\delta(z) = \frac{\beta_{\perp}(z)}{\beta_{\parallel}(z)} = \frac{R_{\perp}(z)}{R_{\parallel}(z)} \cdot \delta_m = \delta_a(z) \left(1 - \frac{1}{R_{\parallel}(z)}\right) + \frac{\delta_m}{R_{\parallel}(z)}. \quad (2.7)$$

Les incertitudes sur les deux rapports de dépolarisation s'écrivent :

$$\frac{\Delta\delta_a(z)}{\delta_a(z)} = \frac{\Delta R_{\perp}(z)}{R_{\perp}(z) - 1} + \frac{\Delta R_{\parallel}(z)}{R_{\parallel}(z) - 1}. \quad (2.8)$$

$$\frac{\Delta\delta(z)}{\delta(z)} = \frac{\Delta R_{\perp}(z)}{R_{\perp}(z)} + \frac{\Delta R_{\parallel}(z)}{R_{\parallel}(z)}. \quad (2.9)$$

On estime à 10 % l'incertitude lié au rapport de diffusion à 355nm.

La pseudo dépolarisation, δ , tend vers δ_m uniquement pour les régions dénuées d'aérosols, où R_{\parallel} tend vers 1. La pseudo dépolarisation, δ , comme le pseudo color ratio, CR^* (cf paragraphe suivant), a l'avantage d'être moins instable lorsque l'on étudie des couches d'aérosols peu denses, et est un paramètre moins sensible aux paramètres instrumentaux [Cairo et al.(1999)]. La dépendance spectrale entre 355nm et 532 nm de la dépolarisation aérosol sera supposée très faible pour des aérosols de type poussière (où la dépolarisation est grande, (Freudenthaler et al. (2009)). Cette information est utile dans le cadre d'une intercomparaison entre les deux observations lidar, LNG et CALIOP. Par exemple, ils ont trouvé δ_a de 0.3 à 532 nm et 0.28 à 355nm pour un panache de poussière du Sahara. Cependant la dépendance spectrale de δ est relié aux changements spectrales des rapport des coefficients de rétrodiffusion. C'est ce que l'on va prendre en compte lorsque nous comparerons δ_{355} et δ_{532} . Par exemple, la couche VI-A du 11 avril, étudiée dans le chapitre 4, est caractérisé par un δ_a de 3%, avec $R_{355}=1.5$ et $R_{532}=2$. En supposant qu'il y a aucune variation spectrale de δ_a , ceci implique lorsque l'on passe de 355 à 532 nm, une variation sur δ allant de 2% à 2.2%. Le pseudo rapport de dépolarisation, δ , évolue dans le même sens que la dépolarisation aérosol, δ_a , ce qui nous permettra d'effectuer une étude comparative sur les variations relatives entre les résultats calculées à partir des données LNG et celles obtenue par CALIOP.

Le rapport entre les coefficients de rétrodiffusion aérosol à 1064nm et 532nm s'appelle le color ratio, CR , défini par :

$$CR(z) = \frac{\beta_{a,1.06}(z)}{\beta_{a,0.53}(z)} = \frac{R_{1.06}(z) - 1}{R_{0.53}(z) - 1} \cdot \frac{\beta_{m,1.06}(z)}{\beta_{m,0.53}(z)} \quad \text{avec} \quad \frac{\beta_{m,1.06}(z)}{\beta_{m,0.53}(z)} = \frac{1}{16}. \quad (2.10)$$

Le rapport entre les coefficients de rétrodiffusion total est aussi calculé pour les mêmes raisons qui nous ont poussées à définir la pseudo dépolarisation. Ce nouveau rapport s'appelle pseudo color ratio, CR^* . Les deux color ratio sont reliés par la relation suivante,

$$CR^*(z) = \frac{\beta_{1.06}(z)}{\beta_{0.53}(z)} = CR(z) \left(1 - \frac{1}{R_{0.53}(z)}\right) + \frac{1}{16R_{0.53}(z)} \quad (2.11)$$

Les incertitudes sur ces rapport de couleurs sont données par :

$$\frac{\Delta CR(z)}{CR(z)} = \frac{\Delta R_{1064}(z)}{R_{1064}(z) - 1} + \frac{\Delta R_{532}(z)}{R_{532}(z) - 1}. \quad (2.12)$$

$$\frac{\Delta CR^*(z)}{CR^*(z)} = \frac{\Delta R_{1064}(z)}{R_{1064}(z)} + \frac{\Delta R_{532}(z)}{R_{532}(z)}. \quad (2.13)$$

On estime à 10 % l'incertitude lié au rapport de diffusion à 532nm et à 20% celle à 1064nm. L'incertitude sur le rapport de couleur sera alors de l'ordre de 30%. Le color ratio est directement relié au coefficient d'Angström, k , paramètre souvent utilisé pour discuter des dépendances spectrales. Ce coefficient est défini comme :

$$k = -\frac{d \ln \tau_a}{d \ln \lambda}. \quad (2.14)$$

k dépend uniquement de l'extinction et non des coefficients de rétrodiffusion. La relation entre k et le color ratio, CR , dépend du rapport entre les deux coefficients, aussi appelé lidar ratio B . CR et k sont reliés par l'équation suivante :

$$CR(z) = \frac{\beta_{a,1.06}(z)}{\beta_{a,0.53}(z)} = \frac{R_{1.06}(z) - 1}{R_{0.53}(z) - 1} \cdot \frac{1}{16} = \frac{B_{0.5a}(z)}{B_{1.06a}(z)} \cdot 2^{-k} \quad (2.15)$$

Lorsque la contribution aérosol en mode fin diminue, k varie entre des valeurs proches de 2 vers 0 et le CR augmente de 0.5 à 1 (Cattrall et al., 2005). La variation relative du pseudo color ratio, CR^* , va dans le même sens que à celle du color ratio CR mais avec une plus faible amplitude avec la décroissance de R. Par exemple, CR^* ne dépasse pas 0.5 même pour des très fortes valeurs de CR lorsque R est autour de 2. Notons aussi, que pour des faibles épaisseurs optiques et des faibles valeurs des fractions d'aérosols en mode accumulation, ce qui est le cas dans notre étude (cf chapitre 3 et 4), le modèle de calcul de O'Neill et al. (2003), suggère des valeurs de k variant de 2 à 3 et donc des valeur de color ratio, CR minimal de 0.25 des valeurs de CR^* pouvant être inférieures à 0.2 avec des valeurs de R à 1064 nm pas trop faible ($>$ à 1.5).

Comme pour la dépolarisation l'évolution du pseudo color ratio, CR^* , va dans le même sens que celle du CR comme le montre les figures 2.4 et 2.5 où sont tracées pour différentes valeurs de rapports de diffusion à 532 nm, les relations entre les deux définitions

de color ratio, et à 355_{\parallel} nm, les relations entre les deux définitions de dépolarisation. L'augmentation relative du CR^* est donc liée à l'augmentation en taille des particules. Ce paramètre est utile pour mettre en évidence des panaches d'aérosol âgés, qui, au cours du transport se seraient par exemple, transformés en noyau de condensation. Associés à des mesures de dépolarisation, ils permettent de discuter qualitativement la nature de l'aérosol. Par exemple, un panache possédant des valeurs élevées en CR^* et δ révélerait la présence de masses d'air âgées susceptibles de contenir des poussières désertiques (fortement dépolarisantes).

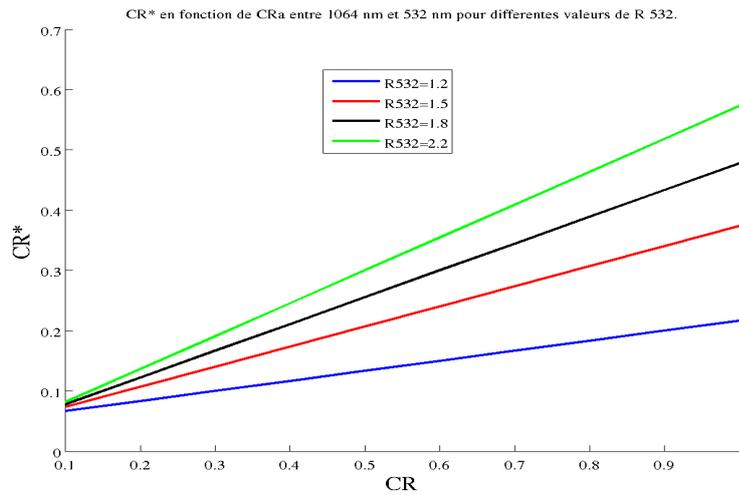


FIGURE 2.4 – Comparaison entre le pseudo color ratio et le color ratio en fonction de différents rapports de diffusion à 532 nm.

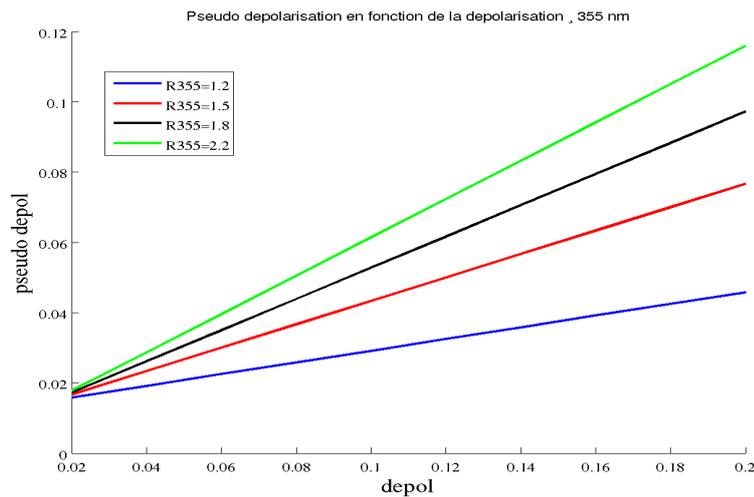


FIGURE 2.5 – Comparaison entre le pseudo rapport de dépolarisation et le rapport de dépolarisation en fonction de différents rapports de diffusion à 355_{\parallel} nm .

2.4 Déroulement de la campagne POLARCAT France printemps.

2.4.1 Outils de prévisions et planification.

Analyse météorologique.

L'analyse météorologique faite en amont de chaque vol se focalisait sur trois paramètres :

- la position du front polaire et arctique (plus au nord).
- l'étendue de la couverture nuageuse.
- l'analyse des champs de vents.

La Température potentielle équivalente, communément appelé θ_e , est la température d'une parcelle d'air à laquelle on aurait enlevé toute sa vapeur d'eau, par un processus adiabatique, et qu'on aurait ramené au niveau de pression de 1000 hPa (1000 mbar).

$$\theta = T_e \cdot \frac{P_0^{\frac{R}{c_p}}}{P} = (T + r \cdot \frac{c_v}{c_p}) \cdot \frac{P_0^{\frac{R}{c_p}}}{P} \quad (2.16)$$

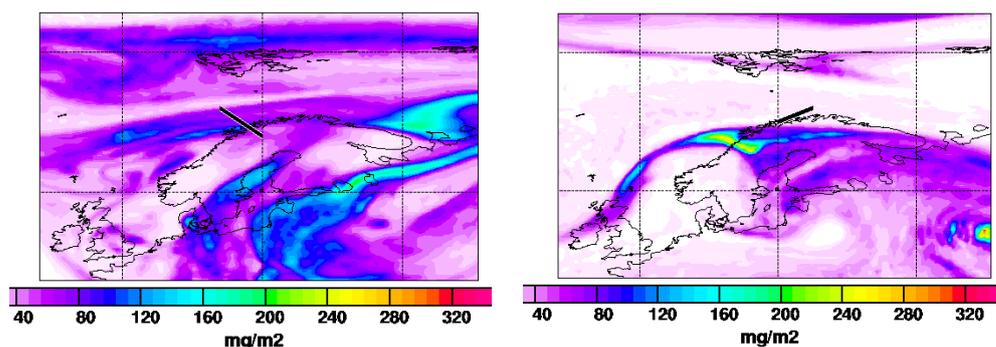
- T_e , Température équivalente.
- P, pression du niveau considéré.
- P_0 , Pression standard égal à 1000hPa.
- R, constante des gaz parfaits (287 J/(kg·K)).
- c_p , chaleur spécifique de l'air sec à pression constante (1004 J/(kg·K))
- T, Température de l'air (degrés Kelvin) de l'environnement au niveau de pression P.
- r, rapport de mélange de vapeur d'eau (g/Kg).
- L_v , coefficient de chaleur latente d'évaporation (de 2400 kJ/kg 25°C à 2600 kJ/kg -40°C).

Le champs de θ_e permet donc de caractériser à la fois les gradients thermiques (position du front) et le transport du contenu en eau par les circulations frontales. Le front arctique sera caractérisé par un gradient horizontal important de θ_e (>50K). La prévision météorologique des nuages était issue des données du centre européen de prévision météorologique à moyen terme (CEPMMT). Les champs de vent sont analysés à 950 et 700 hPa pour déterminer l'origine de l'écoulement.

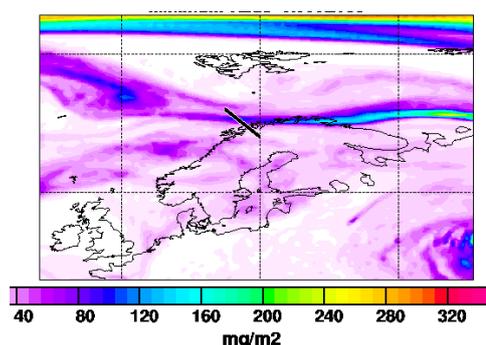
Un outil important fut les prévisions du modèle de transport chimique développé par le NILU : FLEXPART (description détaillé dans l'annexe qui lui est consacré). Le NILU nous a fourni un outil interactif (<http://transport.nilu.no/browser/fpi>) permettant d'avoir une prévision sur différents traceurs d'émissions anthropiques :

- CO et NO_x-traceur purement passif proportionnel aux sources anthropiques (CO et NO_x) et aux feux (CO).
- SO₄-traceur sensible les effets de dépositions secs et humides et proportionnel aux sources anthropiques.
- BC (black carbon)-traceur sensible aux effets de dépositions secs et humide et proportionnel à la fois aux sources anthropiques et aux feux (CO).

Un exemple de simulation FLEXPART est représenté sur les figures 2.6. Celles-ci montrent, en effet, les champs de valeurs de concentration dans la colonne totale atmosphérique pour une espèce donnée. Ainsi, on peut voir que pour le vol du 31 mars, il a été décidé de planifier un vol dans un panache de pollution principalement d'origine anthropique et influencé par l'Europe. Le 8 et 11 avril, la stratégie a plutôt été de voler à travers des panaches de feux de biomasse.



(a) CO Européen anthropique pour 31/03/2008 12UT (b) Biomass Burning 08/04/2008 12UT



(c) Biomass Burning 11/04/2008

FIGURE 2.6 – Préviation FLEXPART pour le CO Européen le 31/03, le Biomass Burning 08/04 et 11/04 à 12UT. La ligne noire représente la direction du vol décidée pour chacun des jours.

2.4.2 Caractéristiques des vols réalisés.

L'ensemble des 12 vols a été réalisé à partir de Kiruna, sauf les 7 et 8 avril où l'avion s'est posé à Lakselv (près du cap Nord) pour ravitaillement. Ce qui a permis de réaliser deux vols scientifiques plus longs. Pour s'approcher du front Arctique, quatre vols (3, 7a, 8 et 9 Avril) ont été dédiés à la validation des techniques d'inversion des observations de IASI (ciel clair), un vol à la validation des produits aérosols (le 7a Avril) et deux vols à la validation des produits nuages de CALIPSO (les 1er et 10 Avril). Quant à la caractérisation in situ des propriétés microphysiques et optiques des nuages, des observations en cirrus

2.4. Déroulement de la campagne POLARCAT France printemps.

ont été obtenues les 30, 31 et 1er Avril. Plusieurs situations de stratocumulus de couche limite et plus ou moins précipitants (phase mixte) ont été effectués les 30, 31 mars, 1er, 6, 9, 10 et 11 Avril. Exceptés les vols retour du 7 et 8 avril, trois régions géographiques ont été couvertes :

- I exploration vers l'ouest de Tromso (68°N 19°E).
- II radiale sur la longitude 19°E entre 68.5°N et 72.7°N.
- III exploration à l'est de Tromso.

Des exemples correspondants à ces trois types d'exploration sont données sur la figure 2.7. Le tableau suivant résume les informations sur les vols ainsi que leurs objectifs scientifiques respectifs et une description sommaire des observations ayant eu lieu.

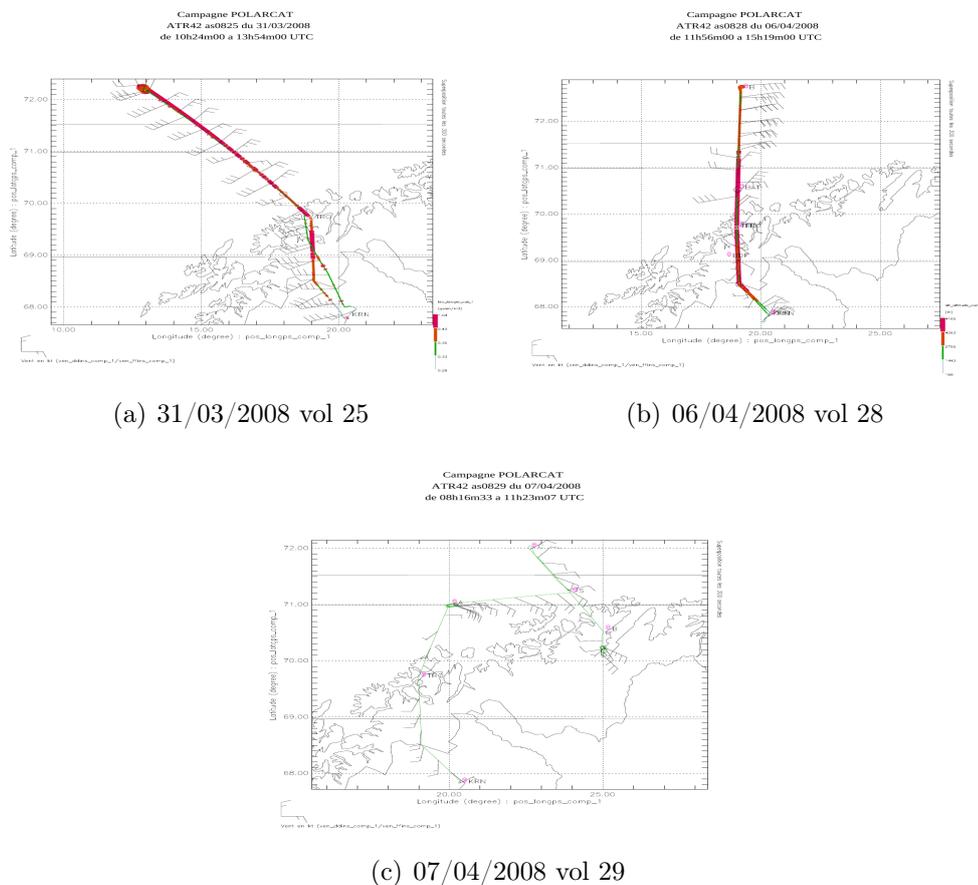


FIGURE 2.7 – Les différents type de vols effectués par l'ATR-42 lors de la campagne POLARCAT au printemps 2008.

Date	T/O Time	LD time	Objectives	Summary of the mission and observations
30/03/10	9 :41	13 :21	<p>Aerosol-cloud-radiation interactions from coordinated observations with remote sensing and in-situ data related to different cloud types.</p> <p>Aerosol sampling system operated in CVI mode during in-cloud flight and in aerosol mode during clear sky sequences.</p> <p>All instruments worked successfully.</p>	<p>Flight over Tromsø FL 90, then FL 60 and 30 towards way point 72.2N-19.0 E . Then FL 150 during way back to Kiruna.</p> <p>Cirrus layer over Tromsø up to the coast line due to a zonal occluded front over North of Scandinavia. Boundary layer topped by fracto-cumulus in the Northern area.</p> <p>From CVI the airmass was rather clean without indication of pollution.</p>
31 March	10 :24	13 :54	<p>Similar objectives of the flight before.</p> <p>All instruments worked successfully.</p>	<p>Flight over Tromsø FL 150 towards WP 72.4N-12.5E. Vertical sounding down FL 10. Then 4 successive soundings into the BL during way back towards coast line.</p> <p>Cirrus layer over Tromsø up to the coast line due to a zonal front over North of Scandinavia. Boundary layer topped by cumulus-stratocumulus in the Northern area. Cloud top about 1700m/ -12°C. LWC max : 0.3 g/m3.</p> <p>Precipitations (ice particles) evidenced down to the sea surface.</p> <p>Evidence of aerosol layer at 4500 m by CVI observations .</p> <p>From CVI the airmass was rather clean without indication of pollution.</p>
1 April	9:41	13:21	<p>Investigation of aerosol and cloud retrieval techniques from space applied to CALIPSO and CloudSat space platforms.</p>	<p>Flight over Tromsø FL 150, then FL 100-150 towards WP 72.4N-12.5E and vertical sounding down FL 10. Then 2 successive soundings into the BL during way back till coast line.</p> <p>Iced wave-clouds and remnant cirrus clouds over the ridge. Stratocumulus with efficient precipitations sampled during way back. Cloud top : 2800m/-18°C. LWC max : 0.8 g/m3, Z max = 20 dbZ, R = 0.3 mm/h.</p> <p>Rather clean air conditions (CVI observations).</p>
3 April	7:38	11:18	<p>Investigation of gas retrieval techniques from space applied to IASI space platform.</p> <p>CVI operated in aerosol mode.</p>	<p>Frontal zone west of Kiruna, dry intrusion at 69N.</p> <p>Flight towards WP A 72N-20E at FL 200 via Tromsø, performing vertical sounding (descent), then sounding (ascent) over point B (72N-22.2E) and way back to Kiruna via Tromsø.</p> <p>Clear sky over the area (successful for IASI validation).</p> <p>Evidence of stratified aerosol layers (at 3500 m and 4500 m) from CVI observations.</p> <p>No cloud microphysics data.</p>
6 April	11:56	15:19	<p>Aerosol-cloud-radiation interactions from coordinated observations with remote sensing and in-situ data and related to different clouds.</p> <p>Aerosol sampling system operated in CVI mode during in-cloud flight and in aerosol mode during clear sky sequences.</p>	<p>Polar arctic front moving northward (beyond 75 N and weak). Polar front west and south of Kiruna.</p> <p>Flight over Tromsø FL 120 towards WP 72.8N-19E. Then vertical sounding down to FL 10. Two successive soundings into the BL during way back till coast line.</p>

2.4. Déroulement de la campagne POLARCAT France printemps.

			All instruments worked successfully.	<p>Stratocumulus with sporadic precipitations sampled on the way back. Cloud top : 1800m/-15°C. LWC max : 1.0 g/m³, Z max = 10 dbZ, R = 0.1 mm/h.</p> <p>Two overpasses above R/V Knorr. First at FL120, second at low level during way back.</p> <p>Still rather clean air conditions (CVI observations) with the exception in the vicinity of Tromsø.</p>
7 April A	8:16	11:23	<p>Investigation of gases, aerosol and cloud retrieval techniques from space applied to IASI, CALIPSO and CloudSat space platforms.</p> <p>All instruments worked successfully.</p>	<p>Flight over Tromsø FL 90 then towards WP 71N-20E at FL 150 then FL 200. Descent to WP 71.2N – 24E at FL10 (ship Toor location). Climb to FL200 toward WP 72N – 22.7E and way back and FL 200 (under the CALIPSO trace) to Lakselv airport with vertical sounding.</p> <p>Several pollution layers at 5000 m seen by eyes and instruments (CO analyser, CVI, ...). Denser layer in the South part of the pattern (near Tromsø).</p> <p>No significant cloud microphysical data.</p>
7 April B	12:58	13:53	Transit flight from Lakselv to Kiruna	Transit flight at FL 200. Only a short sounding in stratiform cloud (precipitating) before landing in Kiruna.
8 April A	8:34	11:47	<p>Investigation of gas retrieval techniques from space applied to IASI space platform.</p> <p>CVI operated in aerosol mode.</p>	<p>Polar arctic front sharpens and is located at 74N, 25E. Polar front has moved to the North and exhibits two branches at 70 and 72 N near 20E.</p> <p>Flight over Tromsø FL 90 then towards WP 71N-22E at FL 150 then FL 200. Descent to WP 71N – 22E at FL10 (R./V Knorr location). Climb to FL200 towards WP 71.8N – 25E. Transect (FL 200) to Lakselv airport with vertical sounding.</p> <p>Quite large aerosol concentration over Tromsø with refractory particles (possibly soot-carbon). Pollution less important towards North-East. Large aerosol concentration in the boundary layer. The three soundings give similar aerosol profiles.</p> <p>No significant cloud microphysical data.</p>
8 April B	13:06	14:20	Transit flight from Lakselv to Kiruna	Transit flight at FL 200. Only a short sounding in stratiform cloud (without precipitation) before landing in Kiruna.
9 April	8:58	12:27	<p>Investigation of gas retrieval techniques from space applied to IASI space platform.</p> <p>Aerosol-cloud interactions from coordinated observations cloud in-situ data and CVI in stratiform clouds.</p> <p>Aerosol sampling system operated in CVI mode during cloud traverses and in aerosol mode during clear sky sequences.</p> <p>PCASP and 2D-C instruments failed.</p>	<p>Flight over Tromsø FL 150 then FL 170 towards WP 70N-17E. Then vertical sounding down to FL 10. FL10 towards WP 71.8N-13E; U-turn and performing cloud sequence and way back to Kiruna FL 150.</p> <p>Pollution layer evidenced between 3000m and 5000m Variation both in altitude and position of aerosol characteristics.</p> <p>Sampling of stratiform layer more dense Northwards. Only a few ice crystals reported.</p>
10 April	10:02	13:23	Investigation of aerosol and cloud retrieval techniques from space applied to CALIPSO and CloudSat space platforms.	Flight over Tromsø FL 180 towards WP 71.45N-14.5E. Then descent to FL 10. FL10 towards WP 72.5N-13E (along CALIPSO track). U-turn and performing several profiles in cloud during way back to Kiruna FL 150. R/V

			<p>Sampling of polluted air mass.</p> <p>All instruments OK.</p>	<p>Knorr overpasses at high and low levels.</p> <p>Clean air in BL near Kiruna. Polluted air with high aerosol concentration (2000 cm^{-3}) above.</p> <p>Sampling of cumulus-stratocumulus transition, more dense northwards. Ice crystals reported.</p>
11 April	09:55	13:20	<p>Investigation of elevated BB aerosol of asian origin</p> <p>Cloud observations north to Tromsø</p>	<p>Flight over Tromsø FL 150. Then flight between FL150 and 200 towards WP 72.3N-19E.</p> <p>Then descent to FL 10. Flight between FL10 and FL 50 and performing several profiles in cloud during way back to Kiruna FL 150.</p>

2.5 Contextes météorologiques des vols effectués.

Dans cette section, nous allons décrire les conditions météorologiques rencontrées pour chaque vol. Pour cela, on utilise les champs de vent à 700hPa et la coupe verticale d'humidité spécifique associée à la température potentielle issues des analyses du modèle sur 91 niveaux du CEPMMT. En supposant que l'advection s'effectue en suivant les isentropes, on pourra caractériser à l'échelle régionale comment les masses d'air observées ont pu être déplacées verticalement. Dans un second temps, on mettra en avant l'origine des masses d'air rencontrées par une analyse des coupes verticales de fraction de particules transportées dans les simulations FLEXPART (cf. Annexe FLEXPART pour plus de détails). Les fractions sont calculées à différentes échéances temporelles avant les observations pour 4 régions :

- la basse troposphère européenne ($z < 3$ km).
- l'ensemble de la troposphère arctique pour des latitudes $> 75^\circ\text{N}$.
- la basse troposphère asiatique ($z < 3$ km).
- la basse troposphère américaine ($z < 3$ km).

On représentera, pour les fractions de particules provenant d'Arctique et d'Europe, les coupes verticales à 4 jours alors que l'on représentera les provenances d'Asie et d'Amérique à 6 jours avant les observations, afin de tenir compte d'un transport à plus longue distance. Enfin, pour chaque jour, il sera présenté une coupe verticale du signal lidar normalisé en énergie laser qui rendra compte des masses d'air échantillonnées et de l'impact des conditions météorologiques sur les zones de vol (couverture nuageuse, air clair, couche limite, panaches d'aérosols, stratification des masses d'air, etc.).

2.5.1 Exploration Frontale : 30 mars - 1er avril, vol 24 à 26.

Le vol du 30 mars 2008 explore le sud d'une zone frontale située à 72°N (gradient horizontal de θ_e sur la figure 2.9(a)). Cette zone, est influencée par un flux de sud, provoqué par une anomalie positive de vorticité au nord du royaume unis vers 60°N - 5°E (Fig.2.9(b)), alors que la partie nord du vol, s'effectue dans une zone de vent faible, avec une intrusion d'air de la haute troposphère (UTLS) et une subsidence suivant les isentropes. Le front Arctique reste au delà de 75°N . Les analyses sur l'origine des fractions de particules FLEXPART du 30 mars 2008 à 12h, 4 jours avant les observations (Fig. 2.9(c) et 2.9(d)), montrent bien la séparation entre les masses d'air européennes et arctiques liée à la présence de la zone frontale. Ce vol est caractérisé par une couverture nuageuse importante au sud de 71°N (zones révélées par les signaux élevés de rétrodiffusion, prenant une couleur rouge sur coupe verticale lidar à 1064 nm (Fig. 2.9(e))) et sera surtout utilisé au nord de cette limite pour l'étude de l'aérosol en air clair. La coupe verticale lidar nous montre le développement entre 71 et 71.5°N de nuages au dessus de la couche limite, vers 1 km d'altitude, caractérisé par des forts signaux en rétrodiffusion (teinté en jaune sur la figure). Les zones teintées de vert, montrent des zones enrichies en aérosol. Ainsi, nous distinguons la couche limite poulluée entre 70°N et 72°N et des panaches d'aérosols présents au delà de 71°N au dessus de 2 km d'altitude.

Les conditions pour le 31 mars sont assez similaires à celle de la veille avec un régime de vent de secteur nord plus soutenu et une distinction moins nette entre le front arctique

et le front polaire (Fig.2.10(b)). La première partie du vol consiste en l'exploration de la PBL arctique entre 70 et 72°N, alors que la seconde partie du vol s'effectue en altitude, au dessus du niveau 500 hPa. Comme pour le vol 24, la couverture nuageuse permet l'étude des couches d'aérosols en air clair principalement au delà de 71°N (Fig. 2.10(a)). Enfin, pour le 1er avril, la situation météorologique se maintient et le plan de vol a permis le même type d'exploration que le vol 25. Notons que les concentrations (Fig.2.5.1) d'ozone indiquent que de l'air stratosphérique a été rencontré au niveau 500 hPa à 72°N et 12h. Les observations lidars du 31 mars et 1er avril sont similaires à ce qui a été décrit précédemment pour le vol 24 (Fig. 2.10(e), 2.11(e)). La figure 2.8(c) montre bien le gradient vertical négatif d'ozone en arctique, avec des plus faibles concentrations autour de 50 ppb près de la surface contre 60 ppb en altitude.

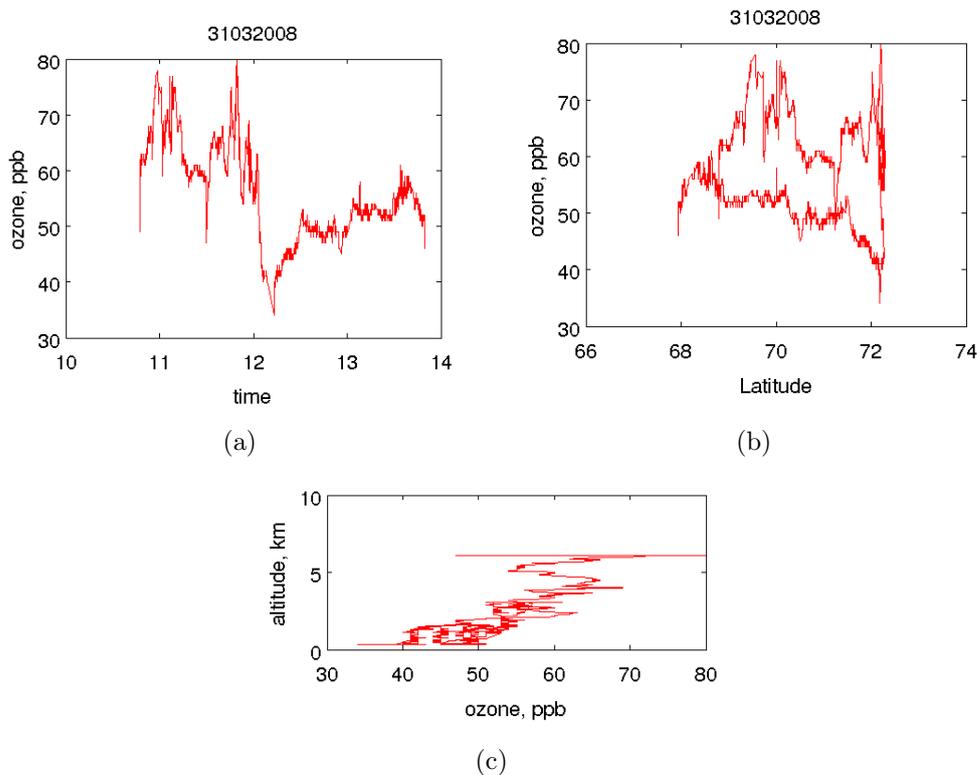


FIGURE 2.8 – Profil méridien (en haut à gauche) et temporelle (en haut à droite) de concentration d'ozone en ppb pendant le vol 25 du 31 mars. Profils verticaux (en bas) concentration d'ozone en ppb effectués lors des montées et descentes de l'avion.

2.5. Contextes météorologiques des vols effectués.

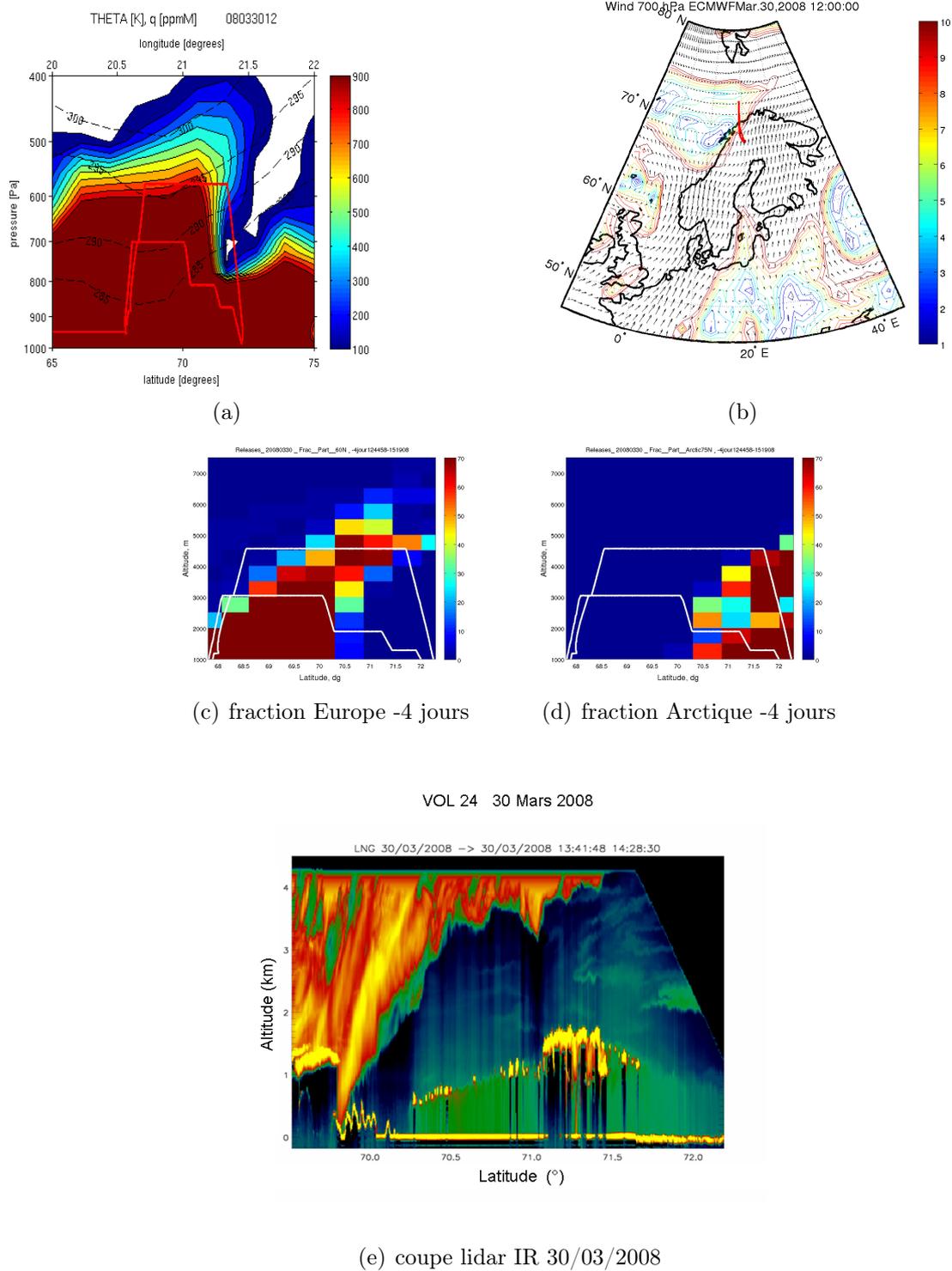
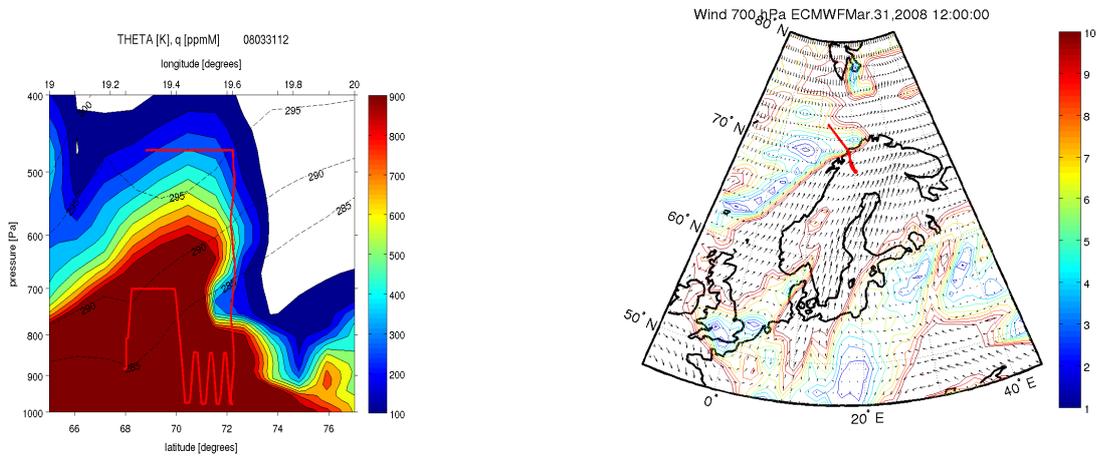
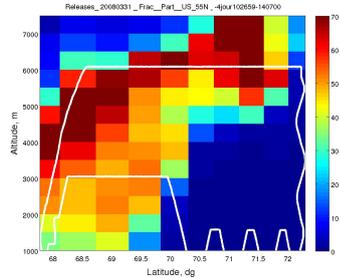


FIGURE 2.9 – Coupe verticale méridienne d’humidité spécifique (Fig.2.9(a)) en ppmM (contours colorés) et température potentielle en K (lignes pointillées). Champ de vent (Fig.2.9(b)) à 700hPa, les lignes colorées montrent les isotach en $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour le **30/03/2008 à 12UT**. La trajectoire de l’avion est représentée par la ligne rouge. Coupe verticale méridienne des fractions de particules calculées par FLEXPART, en %, 4 jours avant les observations, provenant de la basse troposphère ($z < 3\text{km}$) européenne (Fig.2.9(c)) et de l’arctique (Fig.2.9(d)), pour le **30/03/2008**. L’altitude de l’avion est tracée en blanc. La figure 2.9(e) montre une coupe verticale méridienne du signal LNG normalisé de l’énergie laser, pour le canal 1064 nm, du vol 24 entre 69 et 72.5°N.

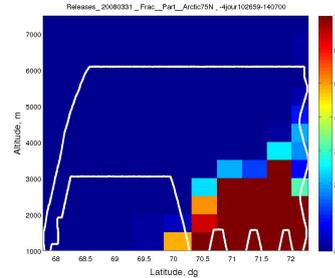


(a)

(b)

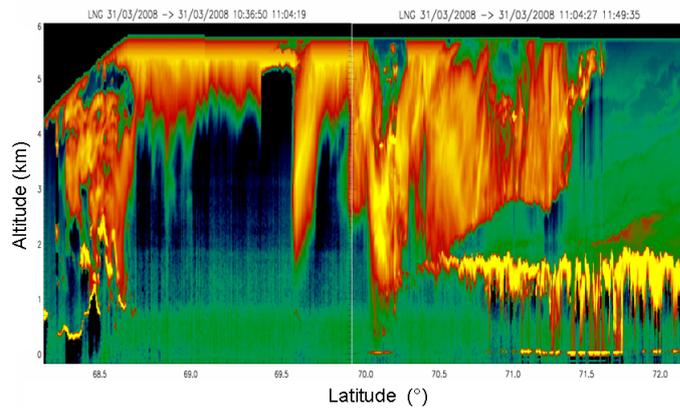


(c) fraction Europe -4 jours



(d) fraction Arctique -4 jours

VOL 25 31 Mars 2008



(e) coupe lidar IR 31/03/2008

FIGURE 2.10 – Coupe verticale méridienne d’humidité spécifique (Fig.2.9(a)) en ppmM (contours colorés) et température potentielle en K (lignes pointillées). Champ de vent (Fig.2.10(b)) à 700hPa, les lignes colorées montrent les isotach en $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour le 31/03/2008 à 12UT. La trajectoire de l’avion est représentée par la ligne rouge. Coupe verticale méridienne des fractions de particules calculées par FLEXPART, en %, 4 jours avant les observations, provenant de la basse troposphère ($z < 3\text{km}$) européenne (Fig.2.10(c)) et de l’arctique (Fig.2.10(d)) pour le 31/03/2008. L’altitude de l’avion est tracée en blanc. La figure 2.10(e) montre une coupe verticale méridienne du signal LNG normalisé de l’énergie laser, pour le canal 1064 nm du vol 25, entre 68 et 72.5°N.

2.5. Contextes météorologiques des vols effectués.

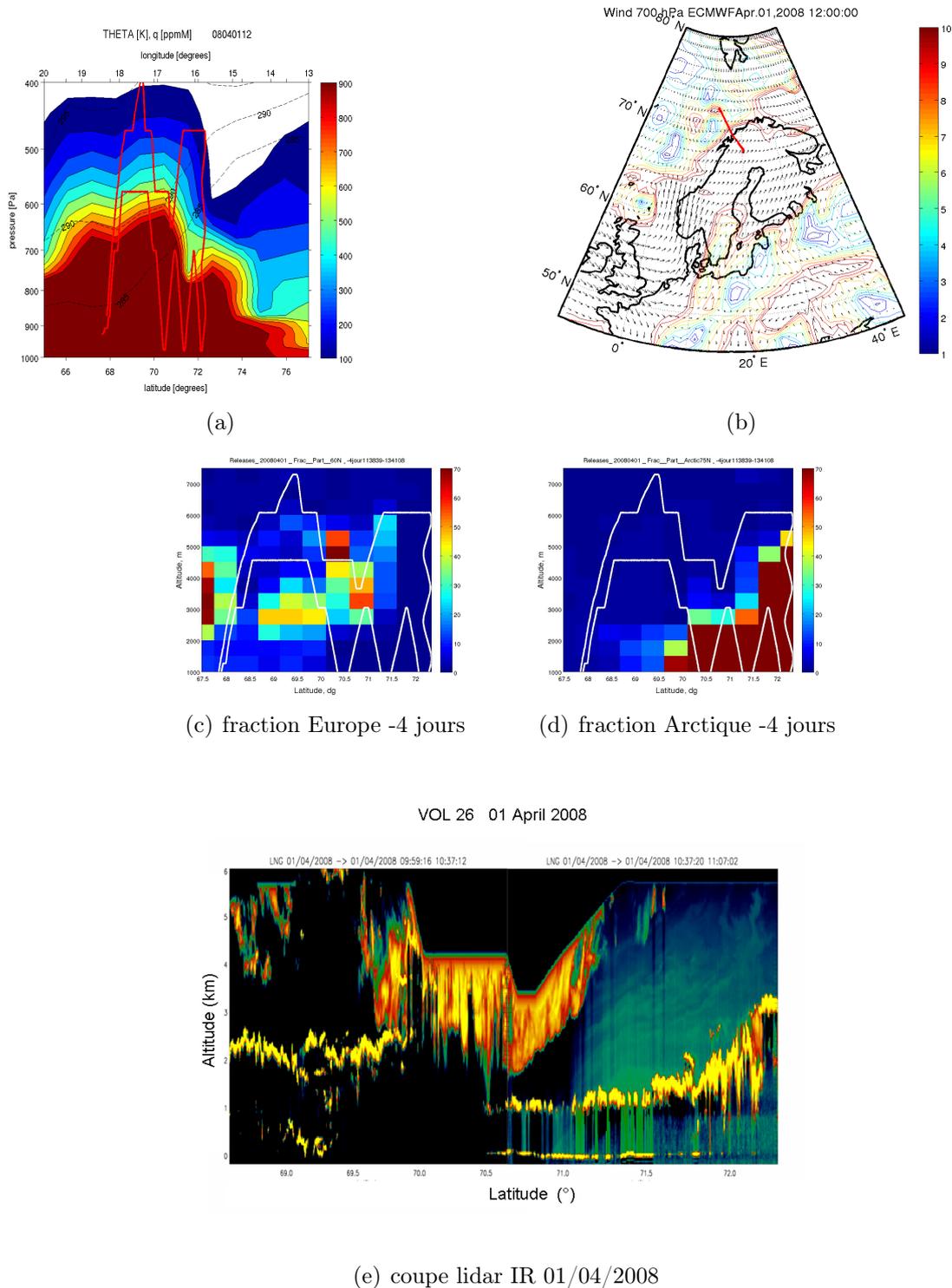


FIGURE 2.11 — Coupe verticale méridienne d'humidité spécifique (Fig.2.11(a)) en ppmM (contours colorés) et température potentielle en K (lignes pointillées). Champ de vent (Fig.2.11(b)) à 700hPa, les lignes colorées montrent les isotach en $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour le **01/04/2008 à 12UT**. La trajectoire de l'avion est représentée par la ligne rouge. Coupe verticale méridienne des fractions de particules calculées par FLEXPART, en %, 4 jours avant les observations, provenant de la basse troposphère ($z < 3\text{km}$) européenne (Fig.2.11(c)) et de l'arctique (Fig.2.11(d)), pour le **01/04/2008**. L'altitude de l'avion est tracée en blanc. La figure 2.11(e) montre une coupe verticale méridienne du signal LNG normalisé de l'énergie laser, pour le canal 1064 nm du vol 26, entre 68 et 72.5°N.

2.5.2 Exploration interfrontale : 3 avril - vol 27.

Le vol du 3 avril est caractérisé par une situation météorologique plus calme. En effet, l'exploration se fait entre un front polaire (68°N) et le front arctique (74°N). Cette région est moins humide en altitude et donc possède une couverture nuageuse plus faible, comme le montre la coupe LNG de ce vol (Fig.2.12). Les champs de vent à 700hPa indiquent que la région est sous l'influence d'un régime de vent faible de secteur sud-est (Fig.2.12(b)). Une anomalie de vorticité potentielle située à 68°N 5°E favorise le transport en altitude d'air depuis l'océan Atlantique nord (voir simulation FLEXPART Fig.2.12(c)). Le flux de nord n'influence que les altitudes au dessus de 6 km et les latitudes au-delà de 71°N . Ce vol a donc permis d'échantillonner le flux de sud sans une couverture nuageuse excessive. Notons un enrichissement en aérosol de la couche limite avec la latitude à partir de 70°N , caractérisé par des signaux élevés sur la coupe lidar.

2.5.3 Transport issue d'un régime de transport de secteur Sud : 6 avril - vol 28.

Le vol du 6 avril correspond à une remontée vers le nord du front polaire sous l'influence d'une dépression marquée sur le Bénélux (Fig.2.13(a)). Le vol s'effectue principalement à l'intérieur et au dessus de la zone frontale, parcourue par des vents de secteur nord-est, au dessus d'une couche limite instable qui s'élève jusqu'à 2 km (Fig. 2.13(e)). Notons que l'ensemble de l'Europe du nord est parcouru par un régime de vent de secteur sud bien établi favorisant aussi le transport de masses d'air européen vers la région de Kiruna. La troposphère explorée ce jour-là sera donc constituée d'un mélange d'air européen en dessous de 70°N , et d'air arctique au delà de 70°N (Fig.2.13(c) et 2.13(d)).

2.5.4 Oscillation frontale : 7 et 8 avril - vol 29 à 32.

La situation de la période du 7-8 Avril correspond à une phase de dissipation de la dépression sur le Bénélux. La zone de vol est marquée par des vents faibles (Fig. 2.14(b) et 2.15(b)) et le front oscille entre 68°N (7/4/2008) et 72°N (8/4/2008). La proximité du front polaire et du front arctique le 8/4 permet de réduire l'influence de la subsidence des masses d'air venant de la haute troposphère arctique. La couverture nuageuse reste cependant modérée lors du vol du 8/04 (voir coupes du lidar LNG sur les figures 2.14(f) et 2.15(f)). La proximité des 2 fronts va permettre de rencontrer sur la zone de vol des masses d'air d'origine très différente. Les simulations FLEXPART montrent effectivement une grande diversité des masses d'air étudiées. L'extension plus au nord ($> 71^{\circ}\text{N}$) du flux de sud permet d'observer jusqu'à cette latitude des masses d'air venant des US, d'Europe ou même d'Asie. En effet les valeurs élevées de fractions d'air asiatique observées le 8/04 à 68°N au dessus de 4 km correspondent à de l'air venant de la Russie centrale après advection sur l'Europe et remontée vers l'Arctique (voir Chapitre 4).

2.5. Contextes météorologiques des vols effectués.

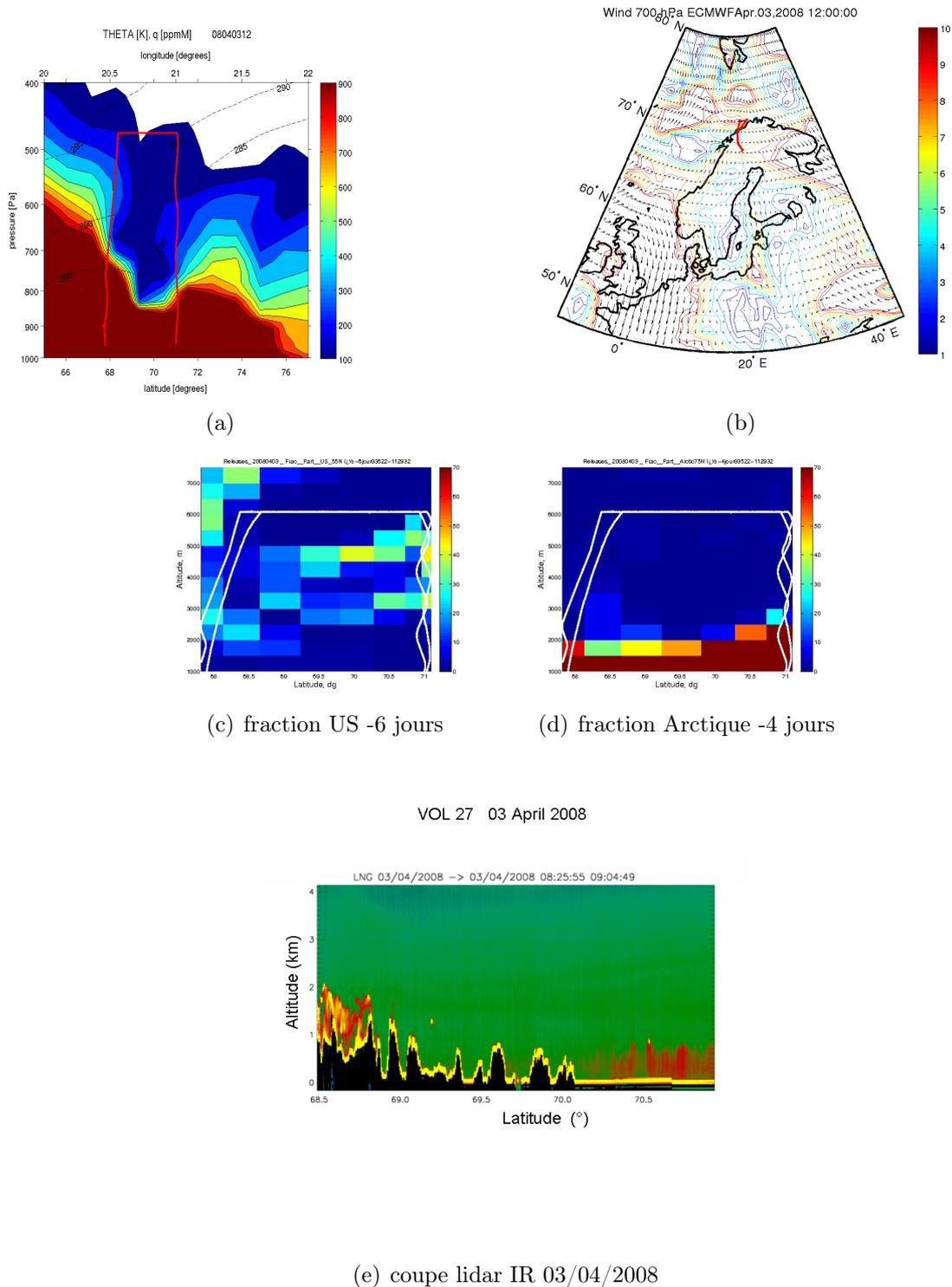
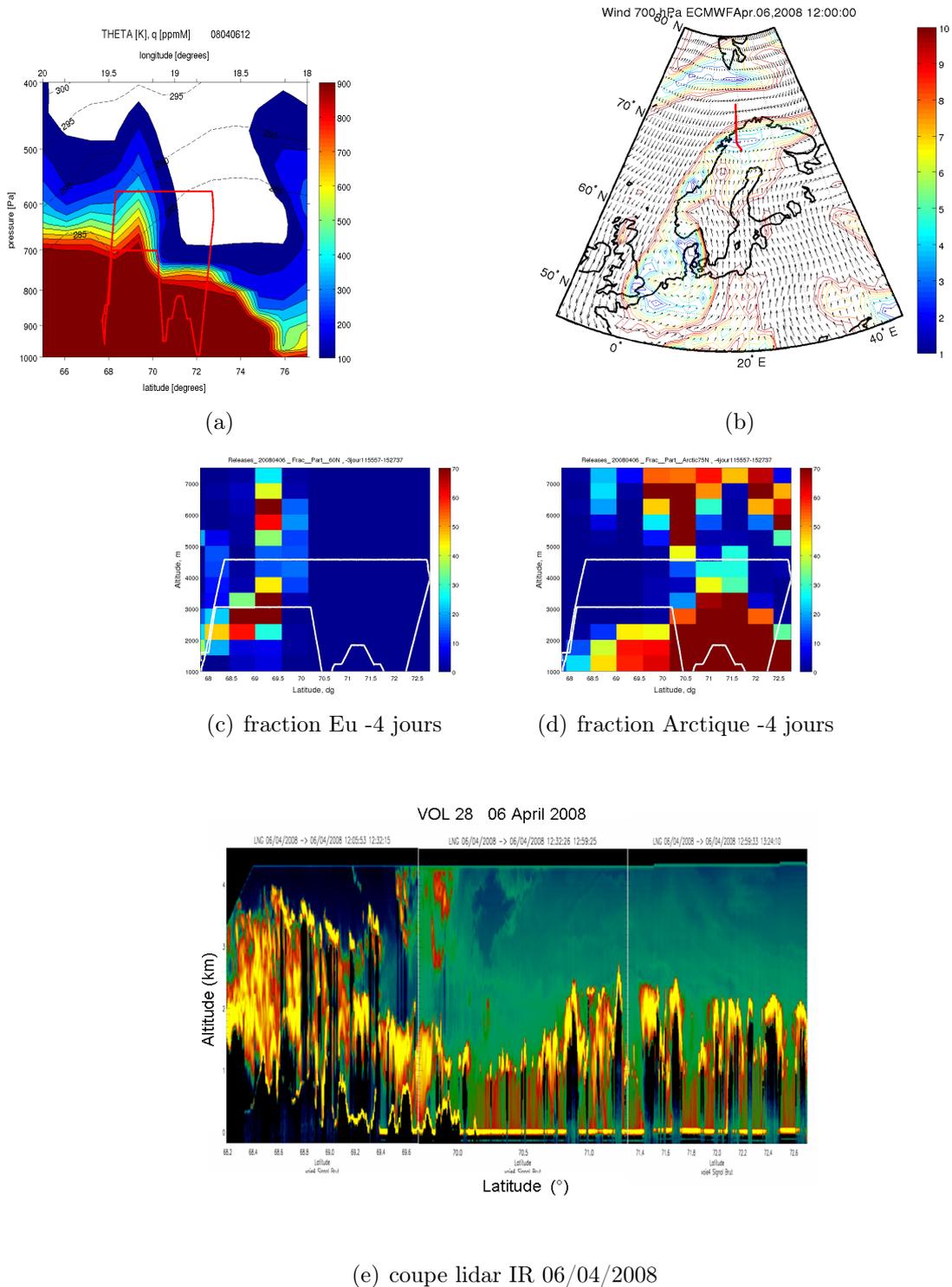


FIGURE 2.12 — Coupe verticale méridienne d’humidité spécifique (Fig.2.12(a)) en ppmM (contours colorés) et température potentielle en K (lignes pointillées). Champ de vent (Fig.2.12(b)) à 700hPa, les lignes colorées montrent les isotach en $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour le **03/04/2008 à 12UT**. La trajectoire de l’avion est représentée par la ligne rouge. Coupe verticale méridienne des fractions de particules calculées par FLEXPART, en %, 6 et 4 jours avant les observations, provenant respectivement, de la basse troposphère ($z < 3\text{ km}$) américaine (Fig.2.12(c)) et de l’arctique (Fig.2.12(d)), pour le **03/04/2008**. L’altitude de l’avion est tracée en blanc. La figure 2.12(e) montre une coupe verticale méridienne du signal LNG normalisé de l’énergie laser, pour le canal 1064 nm du vol 27, entre 68 et 72.5°N.



(e) coupe lidar IR 06/04/2008

FIGURE 2.13 – Coupe verticale méridienne d’humidité spécifique (Fig.2.13(a)) en ppmM (contours colorés) et température potentielle en K (lignes pointillées). Champ de vent (Fig.2.13(b)) à 700hPa, les lignes colorées montrent les isotach en $m.s^{-1}$ pour le 06/04/2008 à 12UT. La trajectoire de l’avion est représentée par la ligne rouge. Coupe verticale méridienne des fractions de particules calculées par FLEXPART, en %, 6 et 4 jours avant les observations, provenant respectivement, de la basse troposphère ($z < 3km$) américaine (Fig.??) et de l’arctique (Fig.2.13(d)) pour le 06/04/2008. L’altitude de l’avion est tracée en blanc. La figure 2.13(e) montre une coupe verticale méridienne du signal LNG normalisé de l’énergie laser, pour le canal 1064 nm du vol 28, entre 68°N et 72.5°N.

2.5. Contextes météorologiques des vols effectués.

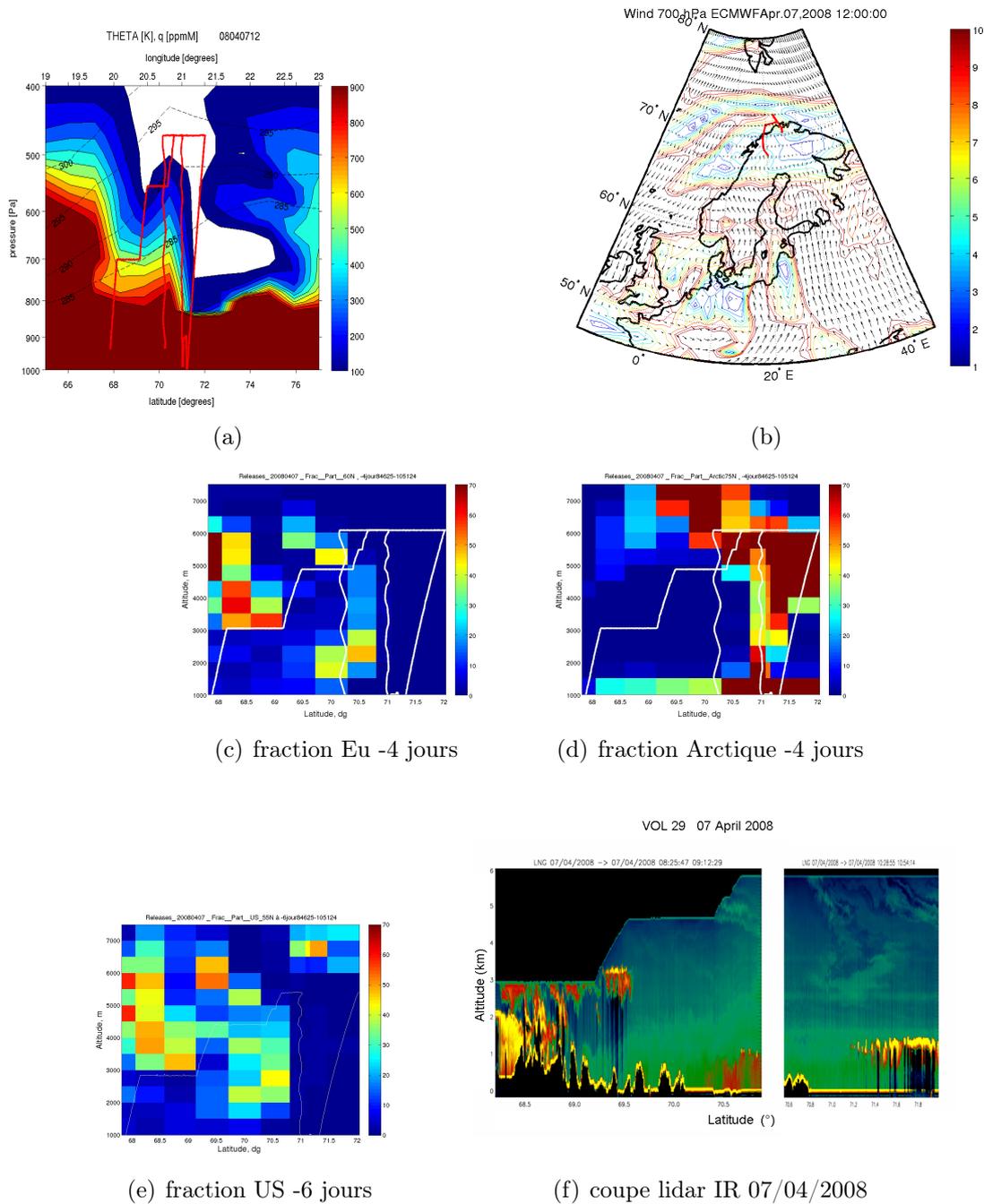


FIGURE 2.14 – Coupe verticale méridienne d’humidité spécifique (Fig.2.14(a)) en ppmM (contours colorés) et température potentielle en K (lignes pointillées). Champ de vent (Fig.2.14(b)) à 700hPa, les lignes colorées montrent les isotach en $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour le **07/04/2008** à 12UT. La trajectoire de l’avion est représentée par la ligne rouge. Coupe verticale méridienne des fractions de particules calculées par FLEXPART, en %, 4 jours avant les observations, provenant de la basse troposphère ($z < 3\text{km}$) européenne (Fig.2.14(c)) et à 6 jours, provenant de la basse troposphère asiatique (Fig.2.14(d)) et d’Amérique (Fig.2.14(e)) pour le **08/04/2008**. L’altitude de l’avion est tracée en blanc. La figure 2.14(f) montre une coupe verticale méridienne du signal LNG normalisé de l’énergie laser, pour le canal 1064 nm du vol 29, entre 68 et 72.5°N.

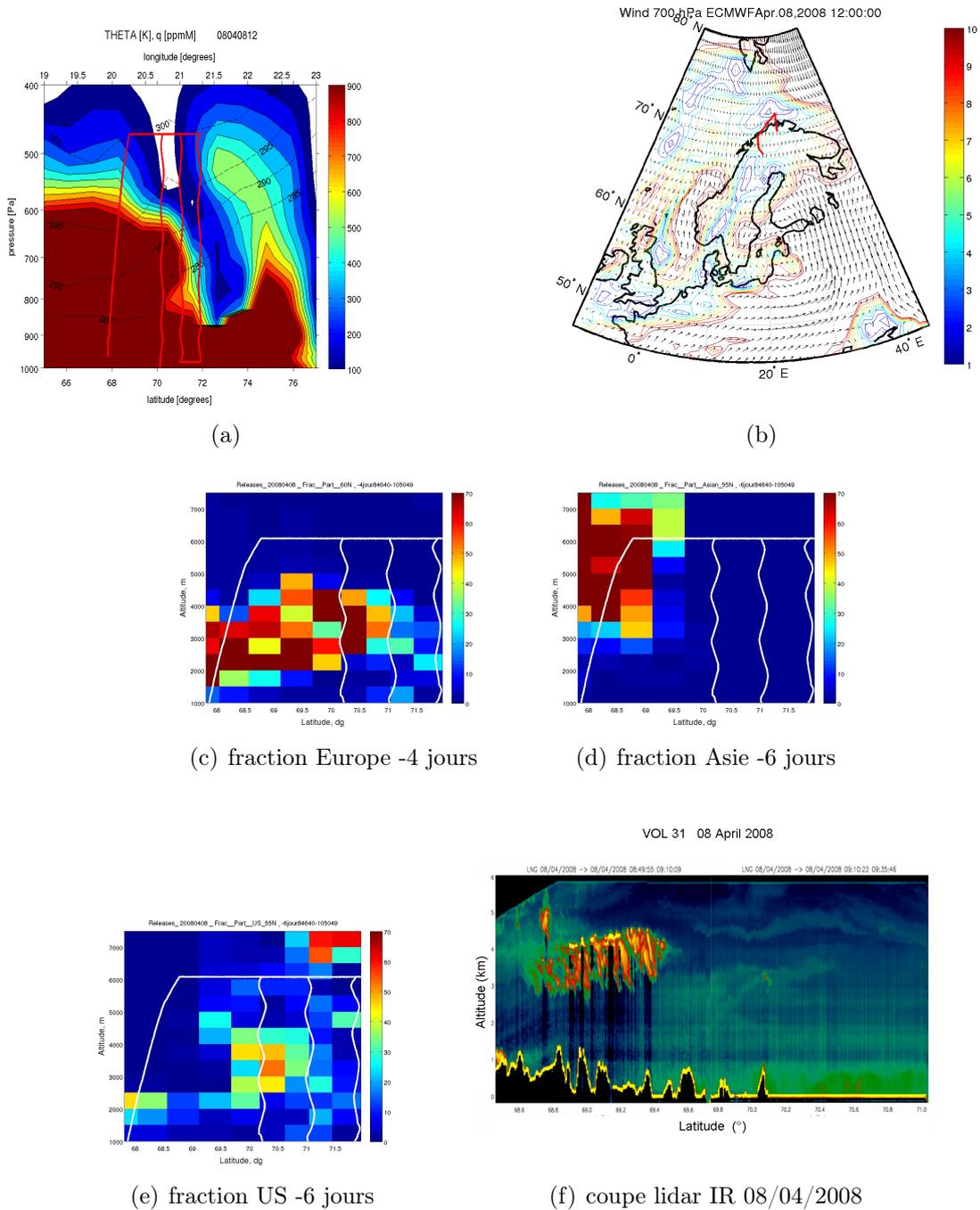


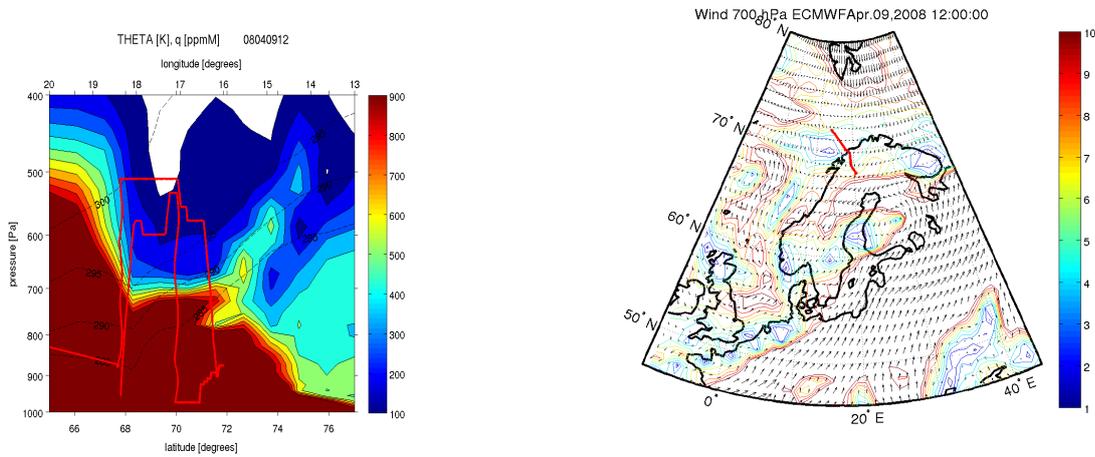
FIGURE 2.15 — Coupe verticale méridienne d’humidité spécifique (Fig.2.15(a)) en ppmM (contours colorés) et température potentielle en K (lignes pointillées). Champ de vent (Fig.2.15(b)) à 700hPa, les lignes colorées montrent les isotach en $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour le 08/04/2008 à 12 :00UT. La trajectoire de l’avion est représentée par la ligne rouge. Coupe verticale méridienne des fractions de particules calculées par FLEXPART, en %, 4 jours avant les observations, provenant de la basse troposphère (z<3km) européenne (Fig.2.15(c)) et à 6 jours, provenant de la basse troposphère asiatique (Fig.2.15(d)) et d’Amérique (Fig.2.15(e)) pour le 08/04/2008. L’altitude de l’avion est tracée en blanc. La figure 2.15(f) montre une coupe verticale méridienne du signal LNG normalisé de l’énergie laser, pour le canal 1064 nm du vol 31, entre 68 et 72.5°N.

2.5.5 Dépression au dessus de la Finlande : 9 avril - vol 33.

La dépression du Bénélux est maintenant positionnée sur la Baltique et correspond à une anomalie de vorticité positive sur la Finlande (65°N - 20°E) qui permet à un régime de vent de secteur sud-ouest de se mettre en place, favorisant l'import de masses d'air européen en Scandinavie (Fig.2.16(b)). Logiquement le front polaire se ré-intensifie à 67°N et le front arctique a son extension maximale vers le sud (72°N) Le vol du 9 avril s'effectue entre ces deux zones frontales (Fig.2.16(a)) au niveau de la troposphère libre exceptée, une petite exploration dans la PBL entre 70 et 71°N . Les simulations FLEXPART montrent un rôle prépondérant des masses d'air européennes même au dessus du front arctique. Seule la PBL entre 70°N et 72°N est influencée par l'air arctique (Fig.2.16(e)).

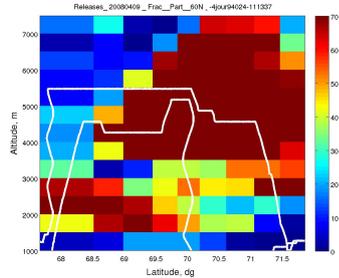
2.5.6 Exploration interfrontale : 10 et 11 avril - vol 34-35.

Comme pour la période du 7/8 avril, la fin de la campagne 9-10-11 avril correspond à des vents plus faibles de secteur nord. En revanche, la zone frontale s'est déplacée vers le sud laissant place à de l'arrivée d'air arctique sur la région (Fig.2.17 et 2.18). La forte inclinaison des isentropes permet pour ces deux jours l'intrusion d'air propice à l'observation des couches d'aérosol en ciel clair. Les simulations FLEXPART indiquent que la basse troposphère sera composée majoritairement d'air arctique alors que la moyenne troposphère sera composée d'un mélange d'air européen et asiatique (Fig.2.17 et 2.18). L'air asiatique est transporté selon deux régimes différents : au dessus de l'Europe pour le 10/04 et au dessus de l'Asie pour le 11/04.

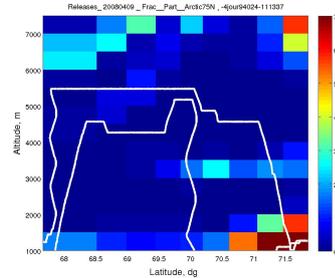


(a)

(b)

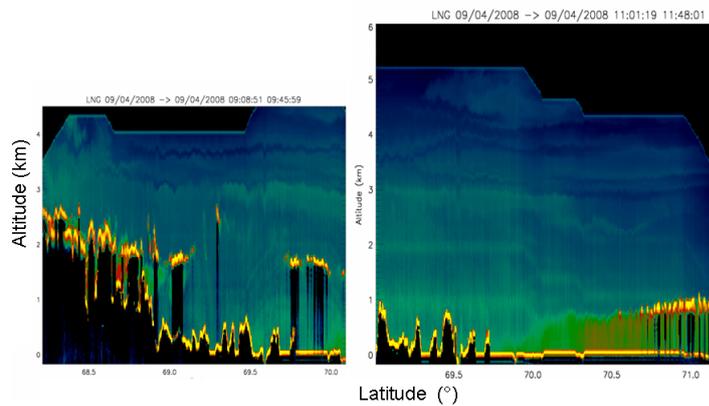


(c) fraction Europe -4 jours



(d) fraction Arctique -4 jours

VOL 33 09 April 2008



(e) coupe lidar IR 09/04/2008

FIGURE 2.16 – Coupe verticale méridienne d’humidité spécifique (Fig.2.16(a)) en ppmM (contours colorés) et température potentielle en K (lignes pointillées). Champ de vent (Fig.2.16(b)) à 700hPa, les lignes colorées montrent les isotach en $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour le 09/04/2008 à 12UT. La trajectoire de l’avion est représentée par la ligne rouge. Coupe verticale méridienne des fractions de particules calculées par FLEXPART, en %, 4 et 6 jours avant les observations, provenant respectivement, de la basse troposphère ($z < 3\text{km}$) européenne (Fig.2.16(c)) et asiatique (Fig.2.16(d)) pour le 09/04/2008. L’altitude de l’avion est tracée en blanc. La figure 2.16(e) montre une coupe verticale méridienne du signal LNG normalisé de l’énergie laser, pour le canal 1064 nm du vol 33, entre 68 et 71.5°N.

2.5. Contextes météorologiques des vols effectués.

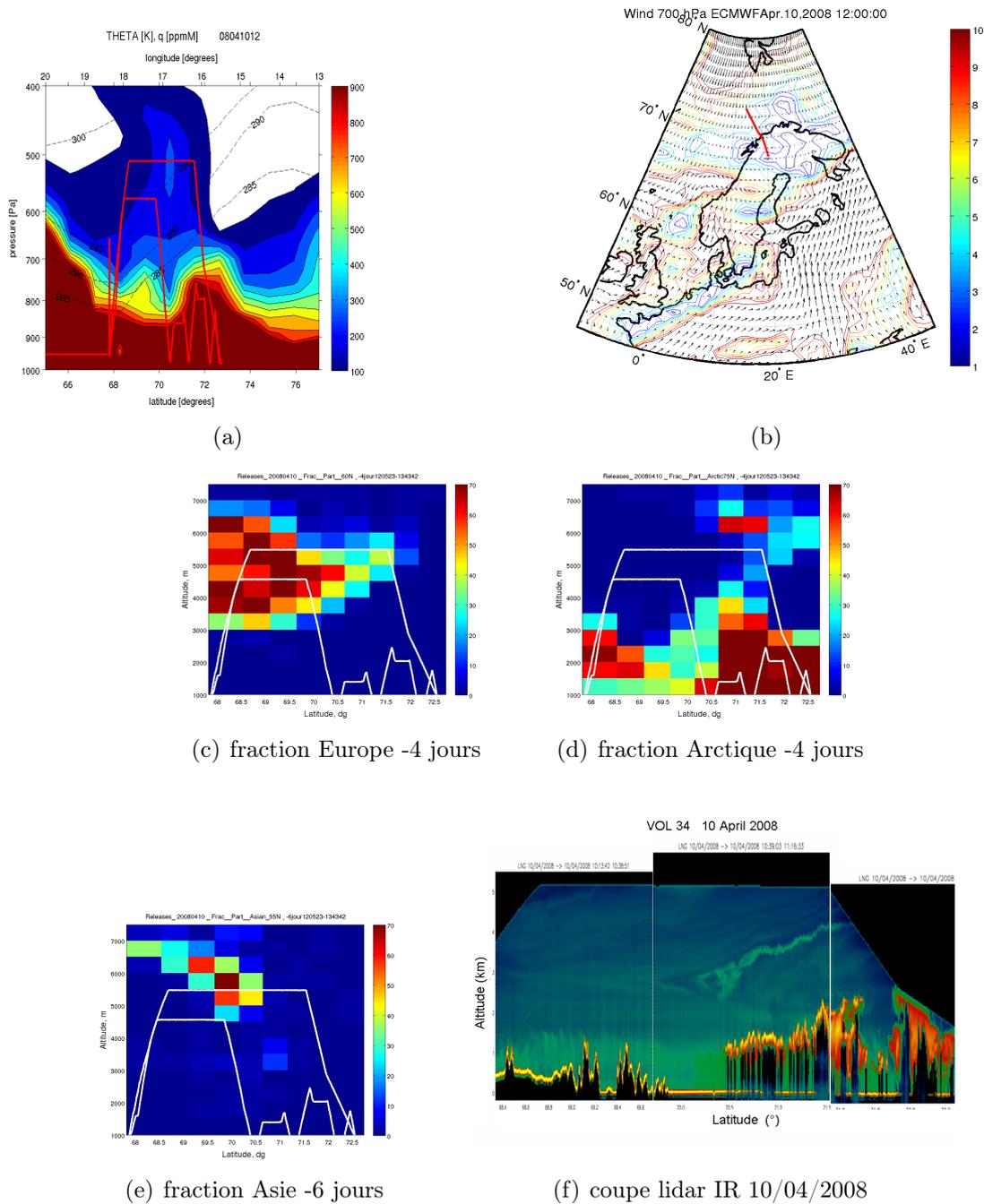


FIGURE 2.17 – Coupe verticale méridienne d’humidité spécifique (Fig.2.17(a)) en ppmM (contours colorés) et température potentielle en K (lignes pointillées). Champ de vent (Fig.2.17(b)) à 700hPa, les lignes colorées montrent les isotach en m.s⁻¹ pour le 10/04/2008 à 12UT. La trajectoire de l’avion est représentée par la ligne rouge. Coupe verticale méridienne des fractions de particules calculées par FLEXPART, en %, 4 et 6 jours avant les observations, provenant de la basse troposphère ($z < 3\text{km}$) européenne (Fig.2.17(c)), d’arctique (Fig.2.17(d)) et d’Asie (Fig.2.17(e)). L’altitude de l’avion est tracée en blanc. La figure 2.17(f) montre une coupe verticale méridienne du signal LNG normalisé de l’énergie laser, pour le canal 1064 nm du vol 33, entre 68 et 71.5°N.

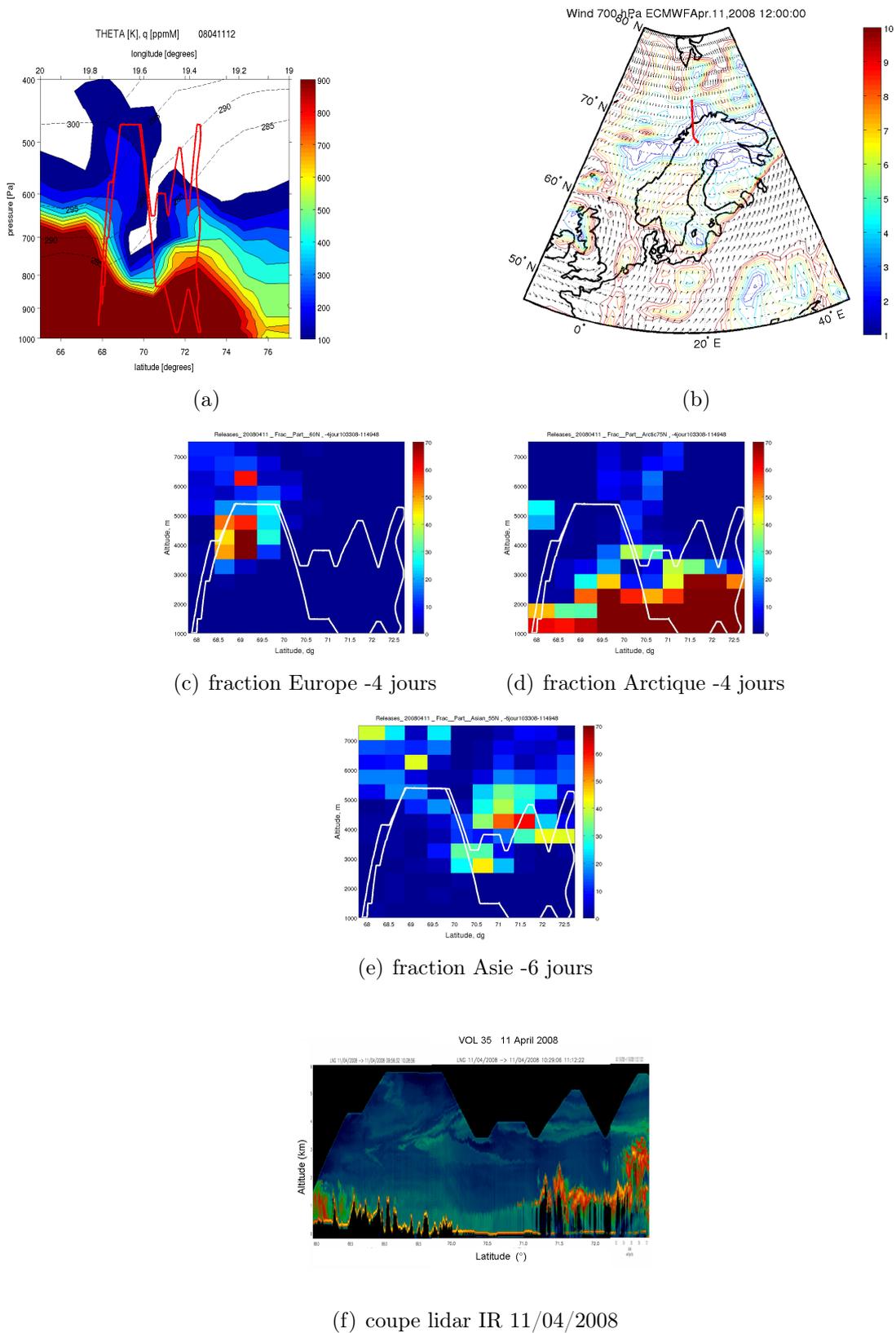


FIGURE 2.18 – Coupe verticale méridienne d’humidité spécifique (Fig.2.18(a)) en ppmM (contours colorés) et température potentielle en K (lignes pointillées). Champ de vent (Fig.2.18(b)) à 700hPa, les lignes colorées montrent les isotach en $m.s^{-1}$ pour le **11/04/2008 à 12UT**. La trajectoire de l’avion est représentée par la ligne rouge. Coupe verticale méridienne des fractions de particules calculées par FLEXPART, en %, 4 et 6 jours avant les observations, provenant de la basse troposphère ($z < 3km$) européenne (Fig.2.18(c)), de l’arctique (Fig.2.18(d)) et asiatique (Fig.2.18(e)) pour le **11/04/2008**. L’altitude de l’avion est tracée en blanc. La figure 2.18(f) montre une coupe verticale méridienne du signal LNG normalisé de l’énergie laser, pour le canal 1064 nm, du vol 35, entre 68 et 71.5°N.

2.6 Conclusion

La campagne printemps POLARCAT-France qui s'est déroulée du 30 mars au 11 avril 2008, a comportée 12 vols. Les conditions météorologiques rencontrées ont permis l'exploration de masses d'air diversifiées. En effet, le début de campagne, du 30 mars au 1er avril, a été marqué par une zone frontale active sur la région de Kiruna, ce qui a permis l'étude de masses d'air contenant de l'aérosol, uniquement au delà de 71°N , où la couverture nuageuse fut moins importante. Ces masses d'air provenaient majoritairement d'Europe et d'Arctique. Ensuite, entre le 3 et le 7 avril, des conditions météorologiques, plus calmes, ont permis l'observation de masses d'air ayant été transportées au dessus de l'océan Atlantique Nord en plus des masses d'air européennes et arctiques. Enfin, la fin de campagne fut caractérisée par la présence de deux zones frontales entre lesquelles se sont effectuées les vols. L'intensification de l'écoulement de part et d'autre des zones frontales ont permis d'échantillonner des masses d'air transportées à longue distance provenant d'Asie (passant par l'Europe (8/04) et l'autre par l'arctique (11/04) cf. Chapitre 4). Notons que la position trop au nord ($>72^\circ\text{N}$) du front arctique ne nous a pas permis de l'explorer et donc de caractériser des épisodes de brumes arctiques. Les masses d'air ont été caractérisées, d'une part d'un point de vue microphysique par une étude portant sur spectre de taille à l'aide d'un compteur optique (CPC3010), d'un granulomètre (PCASP) et du SMPS, d'autre part, à l'aide des mesures lidar aéroporté LNG (émission à 355, 532 et 1064 nm) et qui porte sur des paramètres optiques tels que :

- le coefficient de rétrodiffusion qui donne une information sur le pouvoir rétrodiffusant et l'épaisseur optique de la couches d'aérosol observée.
- CR^* :le pseudo color ratio (rapport entre les valeurs de coefficients de rétrodiffusion total à 1064 et 532nm) permettant une analyse qualitative de la taille de l'aérosol observé. Une augmentation de ce ratio traduit une augmentation en taille des particules.
- δ :le pseudo rapport de dépolarisation (rapport entre les coefficients de rétrodiffusion total 355nm polarisé parallèle et croisé) permettant une analyse qualitative sur la nature de l'aérosol observé.

Ces paramètres permettront, par la suite, une intercomparaison avec les mesures lidar satellites CALIOP (émission à 532 et 1064nm) lors des études climatologiques et lagrangiennes.

Chapitre 3

Climatologie POLARCAT Printemps

3.1 Introduction

Dans cette partie, j'indiquerai dans un premier temps, les résultats obtenus sur l'origine de l'ensemble des masses d'air rencontrées pendant la campagne. Nous verrons ensuite les méthodes d'analyse pour la restitution des profils LNG et la discrimination des couches d'aérosols et enfin la variabilité spatiale et temporelle des données LNG comparées à celle du lidar CALIOP. Comme on l'a vu précédemment, 12 vols ont été réalisés pendant les deux semaines de la campagne de mesure avec une relative diversité des régimes météorologiques. Pour caractériser les propriétés optiques de l'aérosol dans les masses d'air rencontrées tout au long de la campagne, on propose d'établir une étude sur la variabilité spatiale et temporelle des paramètres suivants :

- Le coefficient de rétrodiffusion à 532 nm atténué aérosol, $\beta_{532_{att}}$.
- Le pseudo color ratio : CR*.
- Le coefficient de pseudo dépolarisation, δ .

L'augmentation du pseudo color ratio permettra de caractériser l'augmentation en taille de l'aérosol par exemple le vieillissement de l'aérosol de combustion. Lorsque ceci est couplé à une augmentation de la dépolarisation, on identifie une contribution de la présence des poussières désertiques sur l'augmentation en taille. On distinguera aussi par quelle voie de transport elles furent transportées :

- Europe vers Scandinavie
- Arctique Américain vers Scandinavie
- Arctique Asiatique vers Scandinavie

Cette climatologie a été établie sur l'analyse de 89 couches d'aérosols issues des observations du lidar LNG. On peut considérer que cet échantillon est représentatif de la diversité des masses d'air rencontrées pendant cette période.

Une étude sur les paramètres optiques similaires est effectuée avec les données CALIOP sur la région scandinave (5-30°E 65-80°N), où 70 traces sont disponibles entre le 30 mars et le 11 avril 2008. Une première analyse consistera à regarder les données de niveau 2 sur les propriétés des couches d'aérosols (voir Annexe) à 80km de résolution. Elles nous fournissent des valeurs de $\beta_{532_{att}}$, CR* et δ pour 21 couches classées comme étant aérosol. Pour évaluer l'incertitude associée à l'utilisation de données de niveau 2, nous les avons

aussi recalculées à partir des données de niveaux 1, β_{total} à 532nm, 532_{perp} et 1064nm (voir Annexe). Ceci nous permettra notamment de discuter les différences observées entre les observations aéroportées LNG et CALIOP.

3.2 Variabilité des régimes de transport associés aux couches d'aérosols observées.

3.2.1 Méthodologie

A partir des simulations FLEXPART portant sur les fractions de particules, explicitées dans le chapitre précédent, on a effectué une climatologie temporelle et spatiale des masses d'air rencontrées pendant toute la durée de la campagne.

Ainsi, pour chaque vol, des simulations ont été réalisées tous les 0.5° de 1000 à 7500 mètres par tranche de 500m avec le calcul de fractions de particules provenant de 3 régions : Europe, Asie et Arctique. Afin de voir les différentes contributions des voies de transport passant par l'Arctique, j'ai décidé de regarder la contribution des voies de transport de l'Arctique provenant des régions asiatiques et des régions américaines. Ainsi, à un instant donné, lorsque le nuage de particules se trouve au dessus de 70°N entre -30 et -130°E , il est classé comme "Arctique Amérique", s'il est en dehors de cette zone, il est classé comme "Arctique Asie".

De la même manière, j'ai défini une voie de transport, appelé "SUD" englobant, les particules à un instant donné, se trouvant à des latitudes inférieure à 55°N entre 30°O et 180°O . Cette contribution englobe les particules provenant de l'Europe mais aussi les particules d'origine américaine, transportées au dessus de l'océan Atlantique Nord par les systèmes cycloniques au dessus de l'Islande. Le tableau 3.1 résume les différents modes de transport définis.

Dans les simulations de ce chapitre aucun critère restrictif sur la proportion de particules contenue dans la fraction n'est appliqué. Ainsi, on tient compte des fractions inférieures à 20% provenant d'une région.

mode	latitude	longitude	altitude
Sud	$lat_{part} < 55^\circ\text{N}$	$-30^\circ\text{E} < lon_{part} < 30^\circ\text{E}$	$z_{part} < 3\text{km}$
Asie	$lat_{part} < 55^\circ\text{N}$	$30^\circ\text{E} < lon_{part} < 180^\circ\text{E}$	$z_{part} < 3\text{km}$
Arctique Asie	$lat_{part} > 70^\circ\text{N}$	$30^\circ\text{E} < lon_{part} < 180^\circ\text{E}$	$z_{part} > 1\text{km}$
Arctique Amérique	$lat_{part} > 70^\circ\text{N}$	$-130^\circ\text{E} < lon_{part} < 30^\circ\text{E}$	$z_{part} > 1\text{km}$

TABLE 3.1 – Caractéristiques des zones identifiant les modes de transport utilisés dans la climatologie.

Pour établir ces climatologies, des séries en latitude sont construites, en moyennant sur tous les vols, tous les degrés, entre 67.5°N et 72.5°N , les fractions de particules comprises dans chacun des modes de transport dans la tranche d'altitude considérée. On obtient ainsi, à chaque degré en latitude, une valeur en contenu de fraction de particules pour chacun des régimes de transport.

De même les séries temporelles, sont construites de la façon suivante : pour un vol et une tranche d'altitude donnés, on moyenne les fractions de particules se trouvant dans chacun des modes de transport, sur toute les latitudes explorées par le vol. On obtient donc 4 valeurs, correspondant aux 4 fractions de particules contenue dans les différents modes de transport au jour considéré.

Enfin, dans mon analyse je distingue les basses couches (1-2km), de celles de la moyenne troposphère (2-5km) où la majorité des observations aéroportées ont été effectuées et de la plus haute troposphère (5-7.5 km), couverte essentiellement par les données CALIOP. On s'appuiera dans cette analyse, sur la figure 3.1 qui montrent des coupes méridiennes et des séries temporelles de fractions particules, se trouvant à 6 jours avant l'observation, dans une des régions précédemment décrite.

3.2.2 Variabilité spatiale des régimes de transport associés aux couches d'aérosols observées.

L'analyse de la variabilité spatiale des régimes de transport, associée aux couches d'aérosols observées, nous montre que la diversité des masses d'air rencontrées diffère si on se trouve au nord ou au sud du cercle Arctique.

Dans la zone subarctique ($<70^\circ$ N) la moyenne et haute troposphère sont caractérisées par des régimes de transport passant par l'Europe. En effet, entre 20 et 35 % des particules observées se situent dans cette région 6 jours avant l'observation (Fig.3.1(c) et Fig.3.1(e)). La basse troposphère, elle, connaît un mélange assez homogène, composé d'air européen et arctique (Asie+Amérique), avec 15 à 28% des particules se trouvant dans chacune de ces régions 6 jours avant les observations (Fig.3.1(a)). Notons également, une augmentation de la contribution asiatique avec l'altitude passant de moins de 5 % dans la basse troposphère à 15 % dans la haute troposphère à 68.5° N. Ainsi, on voit que dans cette région subarctique, on a rencontré des masses d'air transportées par les 4 régimes avec une plus grande importance liée aux transports d'air européen.

Dans la région Arctique ($>70^\circ$ N), la composition de la basse troposphère est largement pilotée par les régimes de transport Arctique-Asie atteignant près de 50% de particules à 72.5° N (Fig. 3.1(a)), alors que pour la moyenne troposphère, seule la partie au delà de 71° N doit sa composition à ce régime de transport (Fig. 3.1(c)). Entre 70° N et 71° N, le régime de secteur SUD domine. Cette forte diminution entre 70.5° N et 71.5° N, des particules transportées par le régime Sud, donne une information sur l'extension vers le nord du transport frontal en altitude qui se situe entre le front polaire et le front arctique pendant la période de la campagne. Par exemple, on voit que la haute troposphère est dominé par l'import d'air via des processus de transport à longue distance passant par l'Europe (Fig.3.1(e)).

3.2.3 Variabilité temporelle des régimes de transport associés aux couches d'aérosols observées.

En complément de l'étude sur la variabilité spatiale, il est intéressant de regarder la variabilité temporelle des régimes de transport associée aux masses d'air rencontrées. Globalement, les régimes de transports passant par l'Europe furent majoritaires sur l'ensemble de la campagne, notamment dans la moyenne et haute troposphère, où la plus grande partie des mesures ont été effectuées (colonne de droite de la figure 3.1). On remarque trois caractéristiques pour cette variabilité temporelle :

- La diminution du transport depuis l'Europe dans la moyenne et haute troposphère, en relation avec celle du transport frontale en altitude. Ceci est différent dans les basses couches où le transport frontale s'accompagne aussi de la présence d'air Asiatique dans la PBL (Fig.3.1(b)).
- La permanence du transport de masses d'air depuis l'Asie, en particulier le 8 avril 2008, qui montre un lien direct avec l'Asie à 6 jours (Fig.3.1(c) et 3.1(e)). Ce transport passe par l'Europe à la différence des régimes de transport depuis l'Asie pour les autres jours.
- Une fin de campagne (11 avril) marquée par une présence de masses d'air associées à un transport équilibré depuis l'Arctique, Asie et le sud, dans la moyenne et haute troposphère.

3.2. Variabilité des régimes de transport associés aux couches d'aérosols observées.

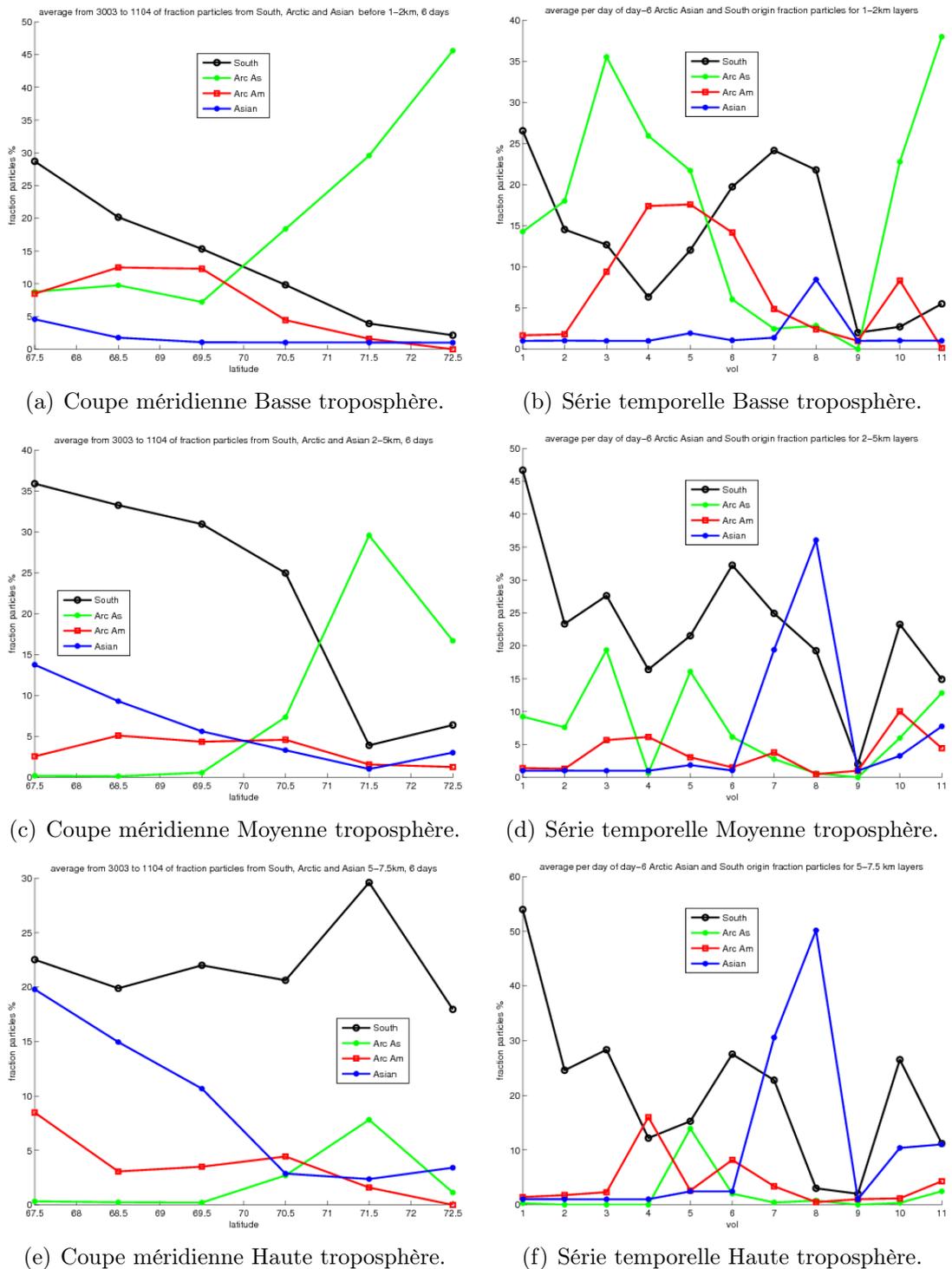


FIGURE 3.1 – Coupes méridiennes (colonne de droite) entre 67.5° N et 72.5° N (un point par degré) représentant la moyenne sur tous les vols, du 20080330 au 20080411, des fractions de particules (%) provenant 6 jours avant les observations, des régimes de transport du Sud (noir), de l'Arctique Asie (vert), de l'Arctique Amérique (rouge) et Asie (bleu). Les figures du haut, du centre et du bas représentent respectivement les coupes et les séries temporelles pour la basse (1-2 km), la moyenne (2-5 km) et haute (5-7.5 km) troposphère libre

3.3 Analyse des observations du lidar LNG

3.3.1 Méthodologie pour caractériser les couches d'aérosol à partir du lidar LNG

Les analyses des profils LNG, ont d'abord consisté à faire une sélection des zones enrichies en aérosols, en effectuant pour chaque vol, des coupes verticales LNG, du coefficient de rétrodiffusion total atténué, issu des canaux Infra Rouge (1064 nm) et vert (532 nm).

Par exemple, la figure 3.2 représente une coupe verticale dans l'Infra Rouge (1064nm) le 9 avril 2008, entre 9h10 (68.5°N) et 9h44 (70°N), du coefficient de rétrodiffusion total atténué. Les zones à partir de 9h10 jusqu'à 9h27 aux altitudes 2-2.5 km possédant localement une forte signature de rétrodiffusion avec des valeurs supérieures à $10^{-2} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$, correspondent à des nuages se développant au dessus de la couche limite.

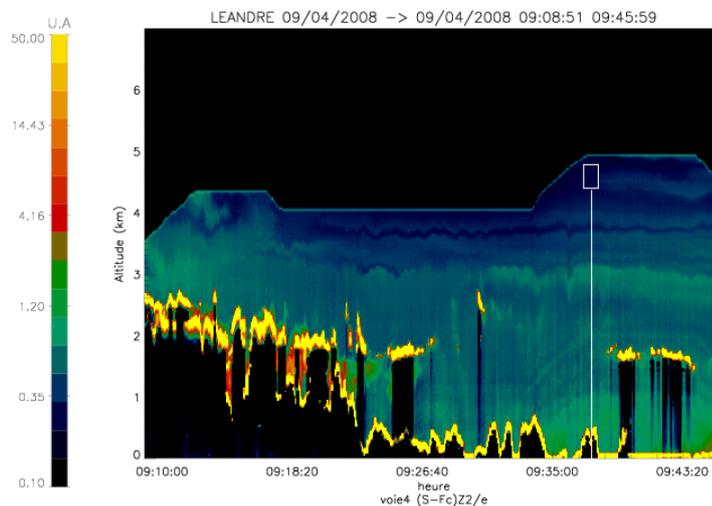


FIGURE 3.2 – Coupe verticale de rétrodiffusion atténuée à 1064 nm en $\text{km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ à visée zénith du lidar LNG le 09/04/2008 entre 9h10 (68.5°N) et 9h44 (70°N).

Sur l'ensemble de la trace, on observe en altitude des zones ayant des signaux moins intenses localement, avec des signatures de l'ordre de $10^{-3} \text{ sr}^{-1} \cdot \text{km}^{-1}$ et correspondant aux couches d'aérosol. Les zones propres, dans lesquelles on calcule un coefficient d'étalonnage, pour l'analyse des profils LNG, sont représentées ici en bleu foncé, correspondant à un signal de l'ordre à $10^{-4} \text{ sr}^{-1} \cdot \text{km}^{-1}$. En effet, on supposera le coefficient de rétrodiffusion dominé par la diffusion moléculaire dans cette zone. Dans le cas du 9 avril présenté sur la figure 3.2, la zone propre choisie pour l'étalonnage, est située à 9h37 (69.7 °N) entre 4.2 et 4.7 km. Afin de minimiser les erreurs, on moyenne 20 fichiers correspondant à 20 secondes soit environ à 3 km de vol. On récupère ainsi, les valeurs moyennes de rétrodiffusion total atténuée pour chaque longueur d'onde entre 4.2 et 4.7 km que l'on corrige ensuite de la diffusion et de la transmission Rayleigh. Pour modéliser la diffusion et la transmission Rayleigh, nous avons choisi de nous appuyer sur le modèle de Peck et Reeder pour la réfraction de l'air [Peck and K. Reeder, 1972], ainsi que sur le modèle

standard atmosphérique, US76. Cette étape nous donne un coefficient d'étalonnage, K , différent pour chaque longueur d'onde et tel que, en divisant par K les signaux lidar, nous obtenons dans la zone propre une valeur de rapport de diffusion R , égal à 1.

Méthode pour sélectionner les zones propres.

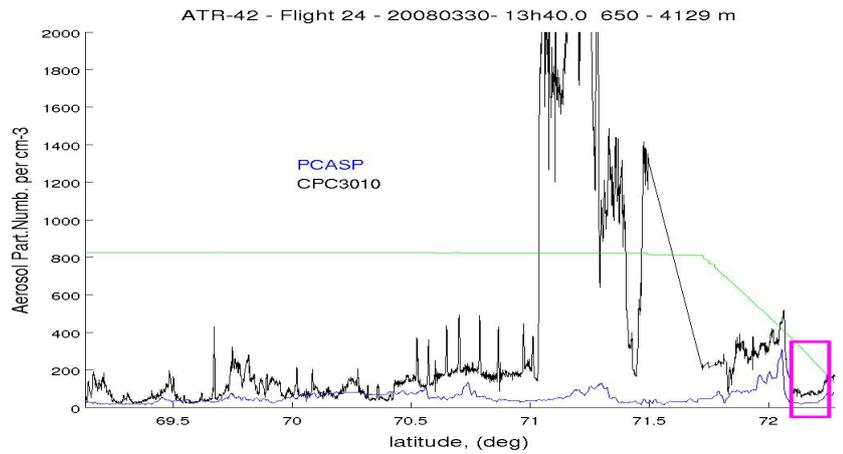
Dans une zone propre, on impose le rapport de diffusion à 355nm et 532 nm égal à 1 car l'étalonnage est moins critique et la contribution de la diffusion Rayleigh très forte. Par ailleurs, à 355 nm on étudiera uniquement le rapport des deux rapports de diffusions (perpendiculaire et parallèle), ce qui permet de réduire l'impact des erreurs systématiques sur les signaux lidar à cette longueur d'onde.

Pour déterminer la valeur maximale du rapport de diffusion possible à 1064 nm dans une zone propre nous avons analysé les vols 24, 25, 27, 31, 34 et 35, où les concentrations des particules sont mesurées dans différentes zones propres par le PCASP, intégré sur toutes les classes de taille, et le CPC3010. Ces zones sont montrées sur les figures 3.3 et 3.4, par les rectangles violets et listé dans le tableau 3.2. Ces zones propres correspondent à des zones où a été effectué l'étalonnage du lidar. Les concentrations mesurées par le PCASP varient entre 10 particules par cm^{-3} (valeur minimum dans une zone propre) et 500 particules par cm^{-3} pour une couche d'aérosols (exemple : vol 35 du 11 avril, Fig.3.4(c)).

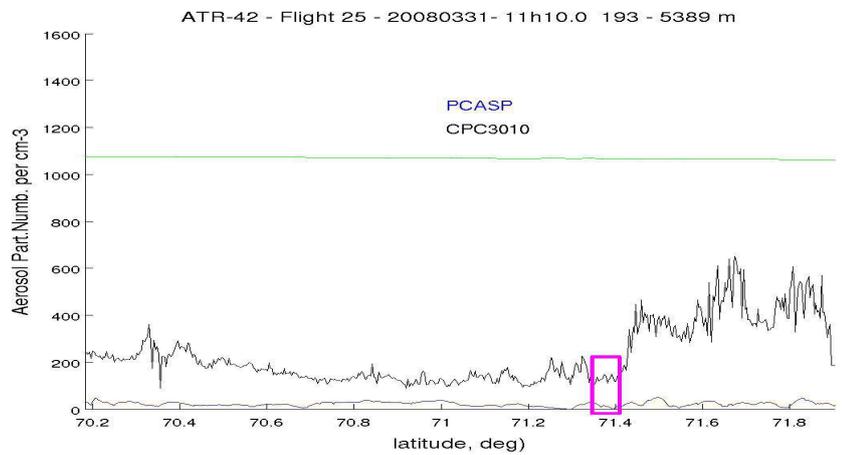
Nous avons tracé sur la figure 3.5 les concentrations de particules mesurées par le PCASP intégré (points bleus), en fonction du $(R-1)$ à 1064 nm pour les zones propres précédemment décrites, ainsi que pour des zones riches en aérosols (points rouges), où nous avons des mesures in situ combinées à des mesures lidar (cf. Chapitre 4). On remarque la bonne linéarité des mesures infrarouge du lidar LNG qui confirme la validité de l'étalonnage. Il est aussi tracé les valeurs de $16*(R-1)$ à 532 nm pour ces couches (pointillés verts), ce qui correspond aux valeurs maximales limites possible de $(R-1)$ à 1064 nm, correspondant à un CR de 1, lorsque nous avons à faire à des aérosols de grosses tailles, et $8*(R-1)$ à 532 nm (points verts) suppose des aérosols avec des coefficients d'Angström de 2, ce qui est plus réaliste dans notre cas et la nouvelle droite d'étalonnage correspond à ce qui serait possible pour le canal IR compte tenu des observations à 532 nm. Ceci permet de fixer la valeur maximal de $R-1$ dans les zones propres où le PCASP varie entre 10 et 40 particules par cm^{-3} . On obtient ainsi une valeur possible de 1.3 pour le rapport de diffusion à 1064 nm dans les zones propres.

jour	vol	latitude (°N)	PCASP int (part.cm ⁻³)	CPC3010 (part.cm ⁻³)
30/03	24	72.5	16	80
31/03	25	71.4	16	153
03/04	27	69.6	31	190
08/04	31	71.1	5	75
10/04	34	68	43	180
11/04	35	68.3	10	170

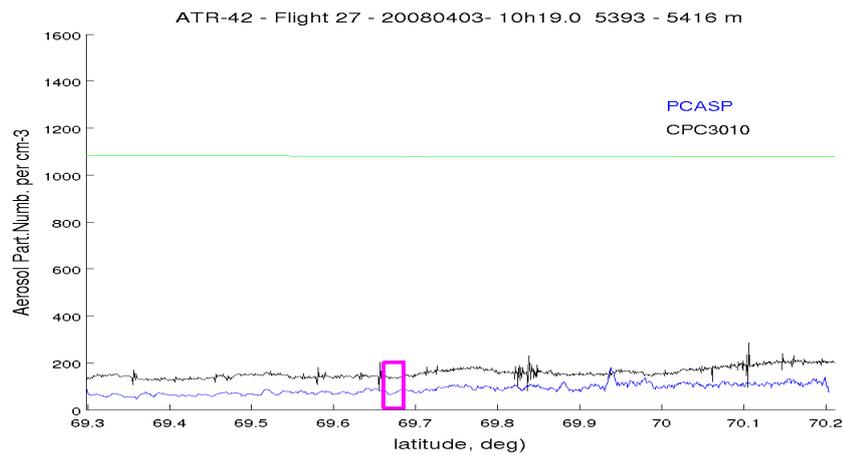
TABLE 3.2 – Concentrations de particules mesurées par le PCASP intégré et le CPC dans des zones propres, pour des vols entre le 30/03/08 et le 11/04/08, où sont effectuées l'étalonnage du lidar LNG.



(a) PCASP et CPC3010 v24, 30/03

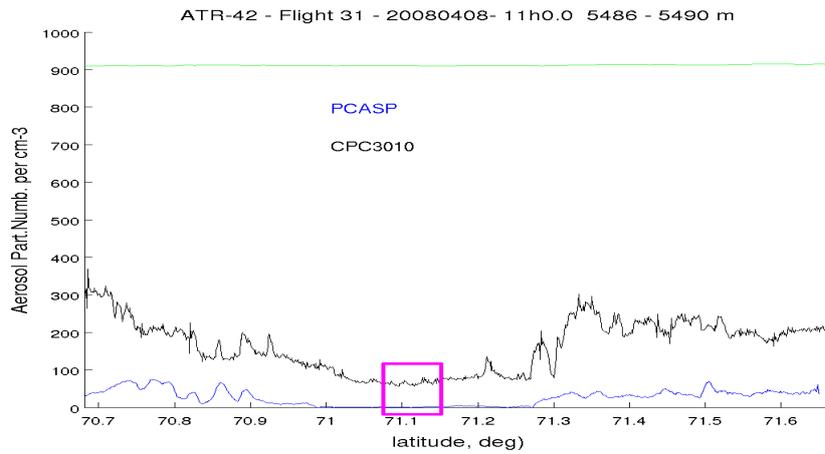


(b) PCASP et CPC3010 v25, 31/03

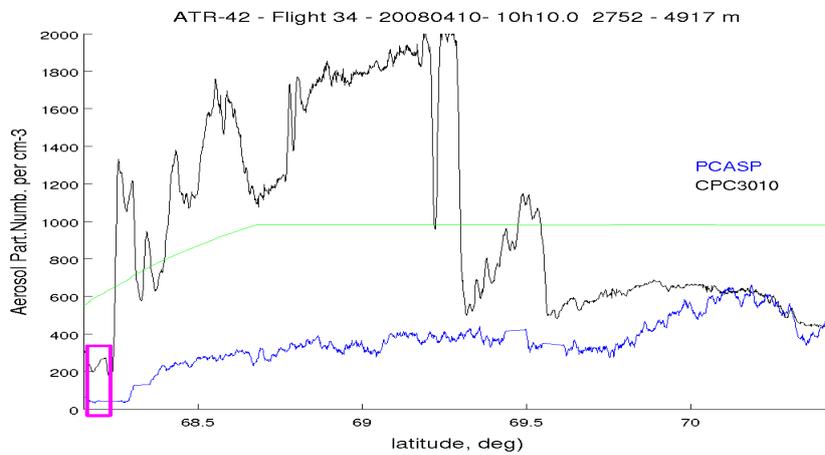


(c) PCASP et CPC3010 v27, 03/04

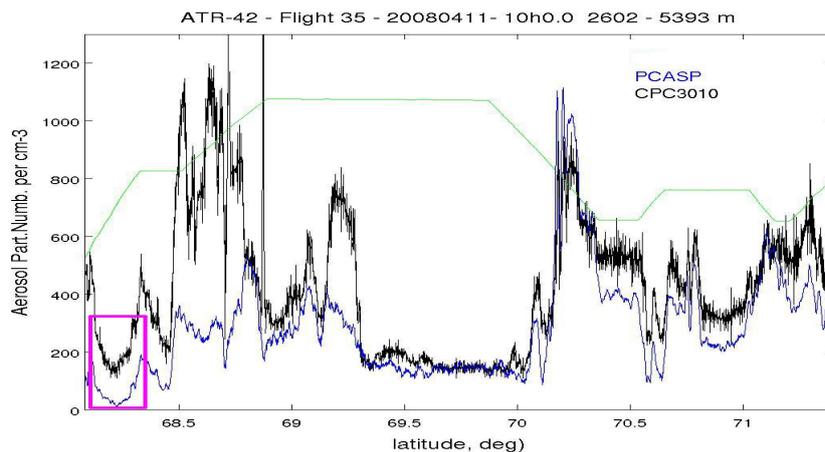
FIGURE 3.3 – Concentration en aérosol mesuré par le PCASP (en bleu) et le CPC3010 (en noir), le long des trajectoires d’avion pour les vols 24, 25 et 27. L’altitude de l’avion divisée par un facteur 5 (en vert) est tracée en mètres en utilisant l’axe vertical de gauche. Les zones représentées par les rectangles violets représentent les zones propres où ont été faites les normalisations lidar.



(a) PCASP et CPC3010 v31, 08/04



(b) PCASP et CPC3010 v34, 10/04



(c) PCASP et CPC3010 v35, 11/04

FIGURE 3.4 – Concentration en aérosol mesurée par le PCASP intégré (en bleu) et le CPC3010 (en noir), le long des trajectoires d’avion pour les vols 31, 34 et 35. L’altitude de l’avion divisée par un facteur 5 (en vert) est tracée en m en utilisant l’axe vertical de gauche. Les zones représentées par les rectangles violet représentent les zones propres où ont été faites les normalisations lidar.

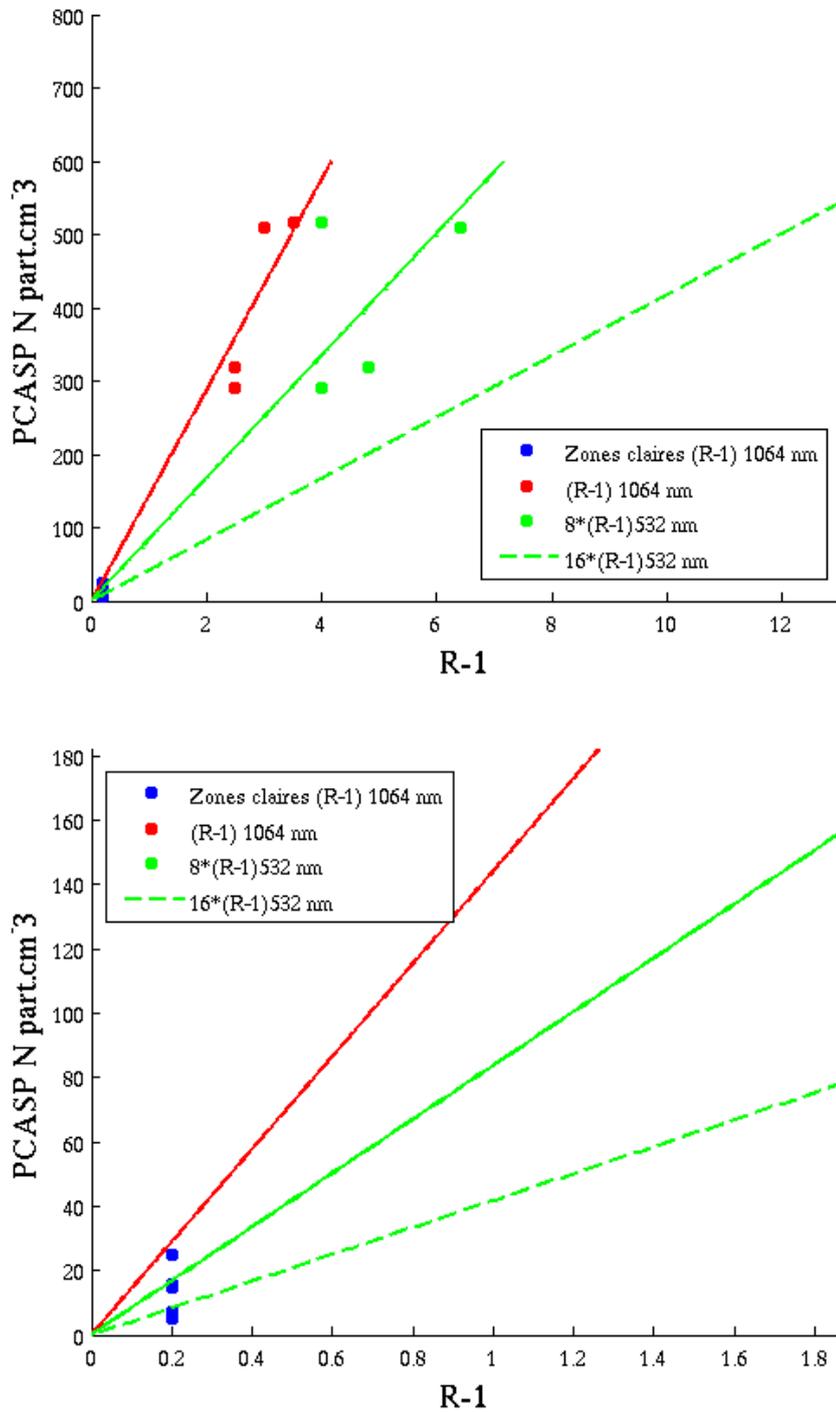


FIGURE 3.5 – Concentrations de particules mesurées par le PCASP intégré en fonction de (R-1) à 1064 nm et des valeurs limites autorisées correspondant à $8^*(R-1)$ et $16^*(R-1)$ à 532 nm, pour les zones propres des vols entre le 30/03/08 et le 11/04/08 (en bleu), et des zones riches en aérosols (en rouge). La figure du bas montre un zoom sur les valeurs des zones propres.

Exemple de restitution de propriétés optiques des aérosols à partir de l'analyse des données LNG.

Pour chaque profil lidar analysé, est appliqué un coefficient déterminé comme décrit plus haut. On obtient ainsi des profils verticaux de rapport de diffusion pour chaque longueur d'onde. Découle ensuite, les paramètres optiques tels que le pseudo color ratio, CR^* et le pseudo rapport de dépolarisation, δ .

Un exemple montre les profils de rapport de diffusion aux 3 longueurs d'ondes, ainsi que le profil de pseudo color ratio et le profil de pseudo dépolarisation, toujours pour le 9 avril à 69.7°N (Fig. 3.6(b), 3.6(c) et 3.6(d)).

On distingue 5 couches d'aérosols dont une dans la couche limite. L'altitude moyenne et les caractéristiques optiques de ces couches d'aérosols sont répertoriées dans le tableau 3.3 ainsi que les erreurs estimées sur le rapport de couleur et le rapport de dépolarisation.

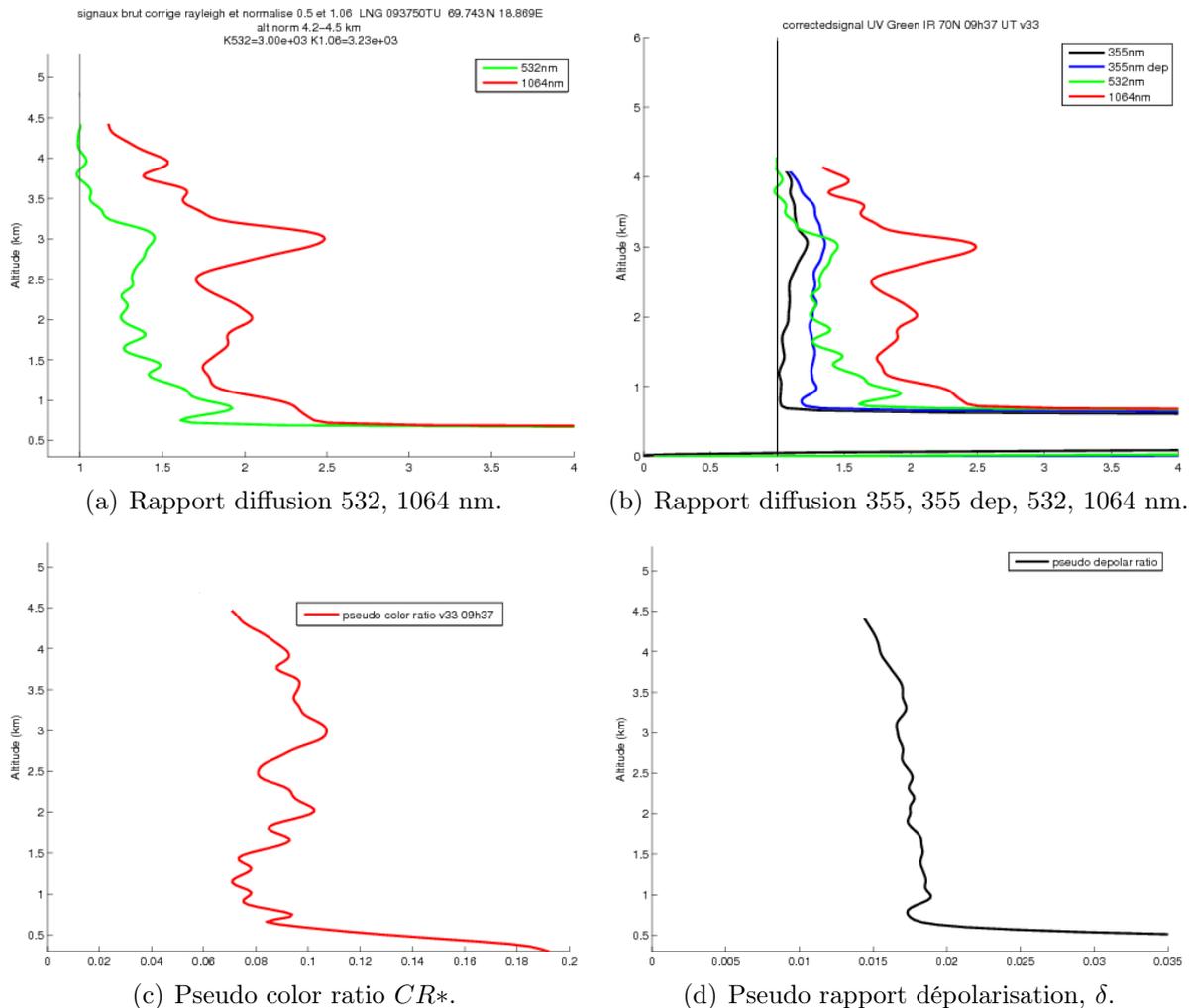


FIGURE 3.6 – Profil de Rapport de diffusion à 532 nm et 1064 nm (figure 3.6(a)), des 4 rapports de diffusion 355, 355 dépolarisé, 532 et 1064 nm (figure 3.6(b)), de pseudo color ratio CR^* (figure 3.6(c)) et rapport de dépolarisation δ (figure 3.6(d)) le 20080409, vol 33. Normalisation effectuée entre 4.2 et 4.5 km. à partir de 20 fichiers, à 69.7° N, 9h37.

On peut résumer l'étude des couches d'aérosol étudiées par :

- Une analyse de l'ensemble des quicklook LNG de la campagne pour identifier les zones possédant une signature de l'ordre de $10^{-3} \text{ .sr}^{-1} \text{ .km}^{-1}$.
- Sélection d'une zone propre observée, si possible sur le même palier afin de minimiser l'erreur sur des variations du coefficient d'étalonnage.
- Le calcul des rapports de diffusion et des rapports de couleur, CR* et δ en utilisant un modèle de diffusion Rayleigh.

Alt (km)	R ₃₅₅	R _{355dep}	R ₅₃₂	R ₁₀₆₄	CR* en %	Δ CR* en %	δ en %	$\Delta \delta$ en %
4	1.1	1.15	1.05	1.53	9.11	2.06	1.57	0.28
3.5	1.12	1.27	1.06	1.65	9.73	2.1	1.7	0.29
2.8	1.22	1.35	1.45	2.48	10.69	1.6	1.66	0.26
2	1.08	1.26	1.25	2.04	10.2	1.82	1.75	0.3
0.9	1.03	1.3	1.9	2.4	7.89	1.07	1.89	0.33

TABLE 3.3 – Rapports de diffusion à 355, 355dep, 532 et 1064 nm, pseudo color ratio, CR*, pseudo rapport de dépolarisation, δ , des couches d'aérosols répertoriées le 09042008, vol 33 à 9h37, 69.7 ° N.

Au final, 89 couches d'aérosols ont été repertoriées dont 55 avec des données à 355 nm exploitables. Remarque : sur certains profils, les valeurs de dépolarisation n'ont pas pu être calculées en raison d'un problème lié à l'instrument concernant le canal à 355nm.

Orgine des couches d'aérosols analysées.

Par ailleurs, lorsqu'une couche d'aérosol est sélectionnée, une simulation rétrotrajectographique FLEXPART est effectuée afin de caractériser sa provenance et par quelle voie de transport elle a été acheminée. Pour reprendre l'exemple du profil de 9h37 à 69.7° N du 9 avril, nous avons vu que 5 couches d'aérosols ont été référencées. La figure 3.7 montre les rétrotrajectoires à 4 jours initialisées le 9 avril à 11UT à 70° N et 18° E entre 1500 et 2000m (Fig.3.7(a)) ainsi qu'entre 3500m et 4000m (Fig.3.7(b)). On voit que ces couches proviennent de l'Europe entraînées par un flux de sud. Elles seront donc référencées comme étant européennes.

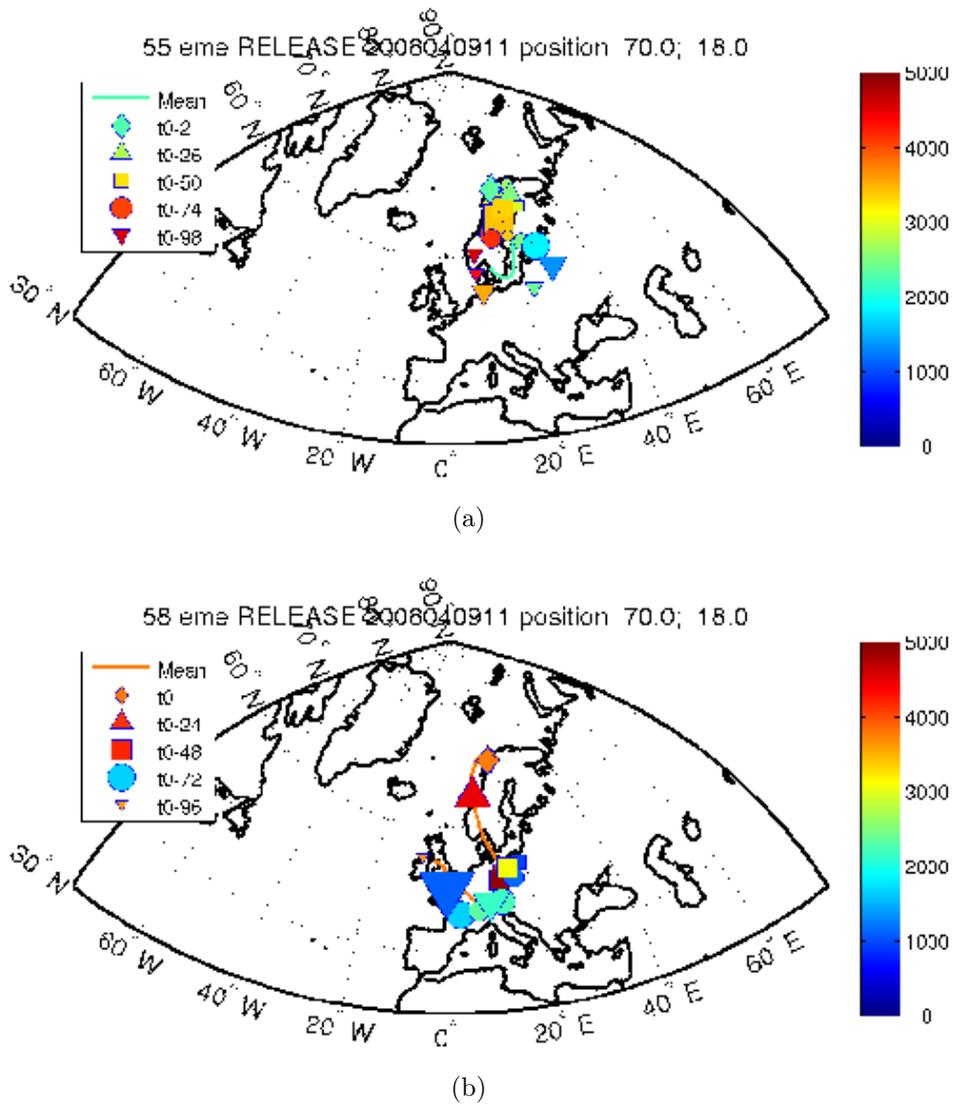


FIGURE 3.7 – Rétrotrajectoires à partir des simulations FLEXPART initialisées le 9 avril 2008 à 11UT à 70° N 18° E entre 1500-2000m (Fig. 3.7(a)) et 3500-4000m (Fig.3.7(b)). Les clusters de particules sont représentés toutes les 24h à partir du début de la simulation. La colorbar représente l'altitude des cluster en mètre.

3.3.2 Variabilité temporelle des couches d'aérosol observées par LNG.

Nous allons d'abord regarder l'évolution des propriétés optiques des couches sur la période de la campagne. La figure 1.6 nous montre des coefficients de rétrodiffusion atténués à 532 nm, β_{532att} , en fonction de l'origine de la masse d'air à 6 jours, pour les 89 couches sélectionnées (36% issues du transport SUD et 64% des régimes Arctique). En effet, sur les 89 couches, 42 sont d'origine Arctique Asie, 14, d'Arctique Amérique et 33, issues du sud de la Scandinavie. La deuxième partie de la campagne de mesure, a été plus sous l'influence de masses d'air enrichies en aérosols. En effet, l'échantillonnage de fin de campagne comporte 61 couches d'aérosols contre 28 pour les six premiers jours. Les couches observées dans la 1ere et 2eme partie, possèdent des caractéristiques de rétrodiffusion similaires. Deux types de couches sont observées : une soixantaine de couches présentant des valeurs de β_{532att} comprises entre 1 et $1.8 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ et une douzaine présentant une plus forte diffusion ($\beta_{532att} > 2 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$) répartie sur l'ensemble de la durée de la campagne. La variabilité temporelle du β_{532att} , est difficilement reliable à celle du transport. Ceci nous incite à nous appuyer sur des critères plus directement liés à la nature ou à la taille des particules, comme la pseudo dépolarisation, δ et le pseudo color ratio, CR^* . On constate des différences, entre ce qui est observé en basse et moyenne troposphère.

Ainsi, on constate dans la basse troposphère libre, une augmentation des CR^* en fin de campagne avec une contribution plus importante des mesures d'air européen sur les valeurs importantes ($> 14\%$). L'ensemble des couches répertoriées ne présente pas ou très peu de dépolarisation, mis à part en début de campagne, où 2 couches transportées depuis l'Asie sont répertoriées (Fig.3.9(a)).

Concernant la moyenne troposphère, notons que la fin de campagne est marquée par des couches d'aérosols accompagnées de CR^* de plus en plus élevé et même une augmentation de la dépolarisation à partir du 8eme jour (CR^* passant de 9% à 13% et δ de 1.5 à 1.7, Fig.3.9(c) et 3.9(d)).

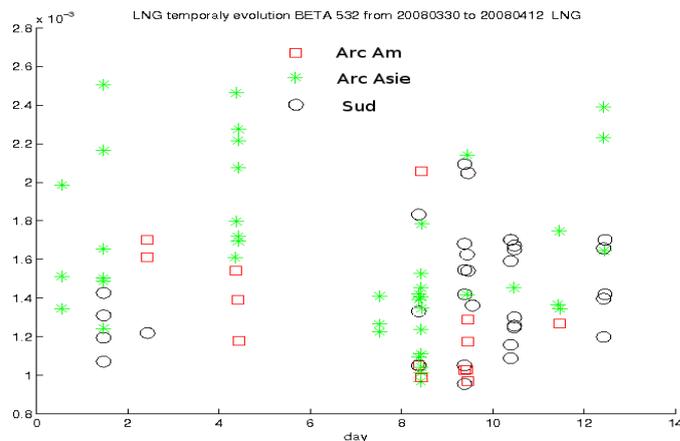


FIGURE 3.8 – Série temporelle du 30 mars (jour 0 en abscisse) au 11 avril 2008 (jour 13 en abscisse), des coefficients de rétrodiffusion atténué, en $\text{km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$, issue des 89 couches LNG en fonction du régime de transport subi : Arctique Asie (étoile verte), Arctique Amérique (carré rouge) et Sud (cercle noir) .

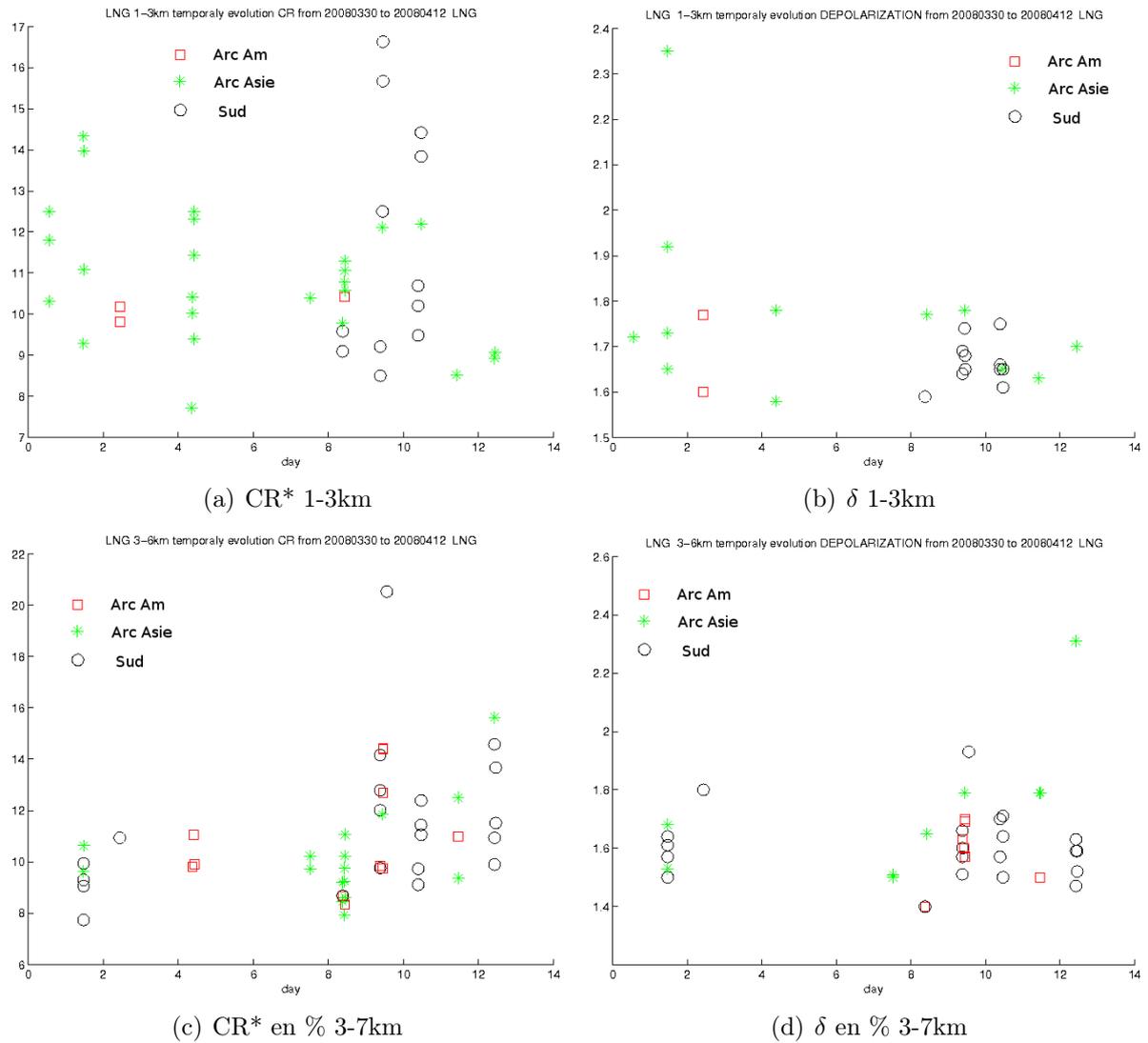


FIGURE 3.9 – Série temporelle du 30 mars (jour 0 en abscisse) au 11 avril 2008 (jour 13 en abscisse) des rapports de pseudo color ratio CR^* et pseudo rapport de dépolarisation, en %, issus des 89 couches LNG en fonction du régime de transport subi : Arctique Asie (étoile verte), Arctique Amérique (carré rouge) et Sud (cercle noir) pour la basse troposphère (1-3km, Fig 3.9(a) et 3.9(b)) et la moyenne troposphère (3-6km, Fig.3.9(c) et 3.9(d)) .

3.3.3 Variabilité spatiale des couches d'aérosol observées par LNG.

La figure 3.10 montre une coupe en latitude, des coefficients de rétrodiffusion atténués en fonction de l'origine de la masse d'air à 6 jours pour les 89 couches sélectionnées pour les deux tranches de la troposphère (1-3 et 3-6km).

La majorité de ces couches présente un signal en rétrodiffusion atténué aérosol, $\beta_{532_{att}}$ compris entre 1 et $1.8 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ avec certaines présentant un plus fort $\beta_{532_{att}}$ compris entre 2 et $2.6 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$, essentiellement situé au delà de 70°N . On constate une plus grande dispersion du $\beta_{532_{att}}$ pour les masses d'air échantillonnées dans les basses couches, que celles dans les hautes couches de la troposphère. Les couches d'aérosols échantillonnées dans la basse troposphère présentent un signal compris entre 1.3 et $2.6 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ alors qu'au dessus, le signal n'excède pas $1.8 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ (exceptée une couche au signal supérieur à $2.2 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$), (Fig.3.10(a) et 3.10(b)). Comme dans l'étude sur la variabilité temporelle, on constate que la variabilité du $\beta_{532_{att}}$ est difficilement reliable à celle du transport. Ceci nous incite à nous appuyer sur des critères plus directement liés à la nature ou la taille des particules avec le δ et le CR^* .

On remarque que les gradients méridiens sur l'évolution spatiale du CR^* , coïncident peu avec ceux du $\beta_{532_{att}}$. Ajoutons que le gradient méridional du CR^* , est beaucoup plus marqué dans la basse troposphère libre, avec un pseudo color ratio qui augmente de 0.09 à 0.13 en moyenne, entre 68°N et 72°N , avec des valeurs singulières valant 0.14-0.16, ce qui se traduit par l'apport de plus grosses particules ; alors que dans la moyenne troposphère, le CR^* moyen diminue de 0.13 à 0.1 entre le sud et le nord de la zone d'exploration. Dans la basse troposphère libre, le gradient positif est plutôt déterminé par l'apport des aérosols asiatiques, alors que dans la moyenne troposphère, le gradient négatif est déterminé par le transport des masses d'air européennes (Fig. 3.11(a) et 3.11(c)).

Enfin, peu de couches présentant de la dépolarisation furent observées. Les couches avec un $\delta > 1.9\%$, sont en dessous de 3 km, au delà de 71°N et uniquement pour des couches transportées depuis l'Asie. Alors que dans la moyenne troposphère, on les trouve plutôt vers le sud, avec 1 cas venant d'Asie et l'autre d'Europe (Fig.3.11(b)).

En utilisant une valeur seuil de CR^* supérieur à 14 %, on peut distinguer 6 couches d'aérosols. Aussi, trois des couches ayant un $\text{CR}^* > 14\%$ sont caractérisées par un rapport de dépolarisation supérieur à 1.9 %, alors que toutes les autres en présentent de plus faibles, compris entre 1.5 et 1.8%. Le tableau 3.4 détaille les propriétés optiques de chacune d'entre elles.

L'origine et l'évolution de ces 6 couches singulières, seront analysées plus en détails dans le chapitre suivant en utilisant une approche de type Lagrangienne.

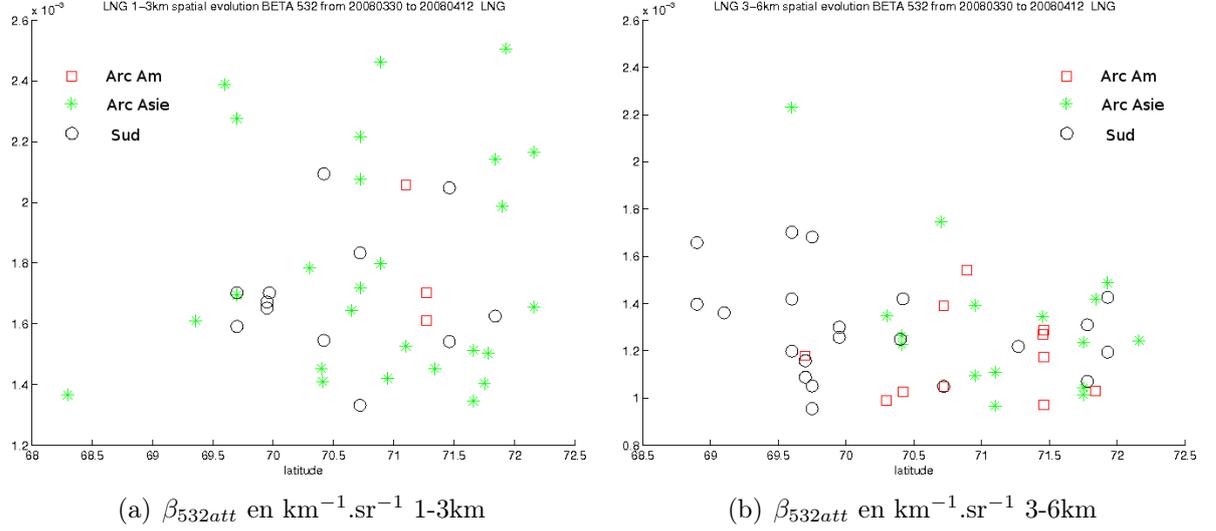


FIGURE 3.10 – Coupe méridienne entre 68.5 et 72.5°N des coefficients de rétrodiffusion atténué, en $\text{km}^{-1}.\text{sr}^{-1}$, issue des 89 couches observées par le lidar LNG entre le 30 mars au 11 avril 2008, en fonction du régime de transport subi : Arctique Asie (étoile verte), Arctique Amérique (carré rouge) et Sud (cercle noir) pour la basse atmosphère (1-3km, Fig.3.10(a)) et la haute troposphère (3-6km, Fig.3.10(b)).

date	vol	heure	Lat	alt (km)	R_{532}	β_{532} ($10^{-3}\text{km}^{-1}.\text{sr}^{-1}$)	$\text{CR}^* \pm \Delta \text{CR}^*$ (%)	$\delta \pm \Delta \delta$ (%)
03/31	25	11 :44	71.93	2.4	2.05	2.5	14.3 ± 1.31	2.35 ± 0.33
03/31	25	11 :49	72.16	2	1.7	2.2	14 ± 1.56	1.9 ± 0.32
04/08	31	09 :11	69.75	3	1.47	2.5	14.1 ± 1.8	1.5 ± 0.2
04/08	31	11 :03	71.46	3.4	1.3	1.5	14.4 ± 2.1	1.7 ± 0.2
04/08	32	13 :30	69.1	4.4	1.37	1.4	20.5 ± 2.41	1.8 ± 0.24
04/11	35	10 :28	69.6	3.3	2	2.2	15.6 ± 1.41	2.31 ± 0.29

TABLE 3.4 – Caractéristiques optiques des couches d’aérosols répertoriées par les analyses des données LNG ayant un $\text{CR}^* > 14\%$.

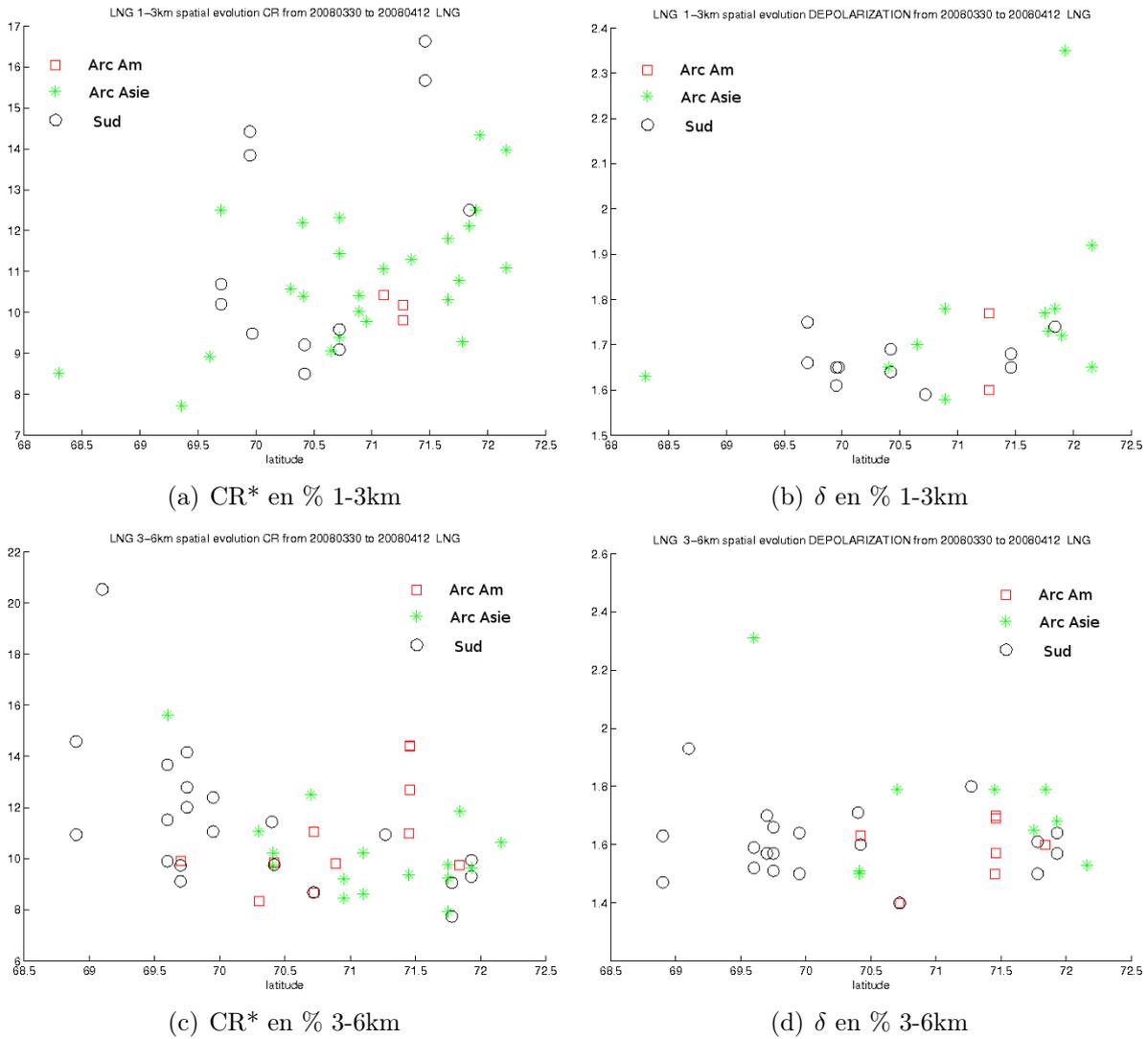


FIGURE 3.11 – Coupe méridienne entre 68.5°N et 72.5°N des rapports de pseudo color ratio CR^* et pseudo rapport de dépolariation, en %, issus des 89 couches observées par le lidar LNG entre le 30 mars et le 11 avril 2008, en fonction du régime de transport subit : Arctique Asie (étoile verte), Arctique Amérique (carré rouge) et Sud (cercle noir) pour la basse troposphère (1-3km) (Fig 3.11(a) et 3.11(b)) et la moyenne troposphère (Fig 3.11(c) et 3.11(d)).

3.4 Climatologie des couches d'aérosols observées par CALIOP.

Dans cette partie, on présentera la variabilité spatiale et temporelle tirées de l'exploitation des données CALIOP, cantonnée à une zone proche de Kiruna (65-80° N 5-30° E). 70 traces CALIOP sont disponibles dans cette zone, entre le 30 mars et le 11 avril 2008.

On présentera d'abord, l'étude des paramètres optiques issues des données de niveau 2, c'est-à-dire, sur les couches d'aérosol sélectionnées par les produits opérationnels CALIOP, puis, nous comparerons cela à l'exploitation des données de niveau 1. Ceci nous permettra d'une part, de discuter les incertitudes éventuelles des produits opérationnels et d'avoir des moyennes sur un plus grand nombre de profils, afin de réduire les erreurs sur une analyse des paramètres optiques sélectionnés.

3.4.1 Variation temporelle de la distribution des couches d'aérosols issues des produits opérationnels.

La description détaillée des produits CALIPSO niveau 2 a été faite dans l'annexe CALIPSO, et est disponible sur le site la NASA. Pour rappel, l'étude présentée ici, est basée sur les paramètres optiques (β_{532} , CR^* , δ) pour des couches détectées comme étant aérosol. Ces couches sont détectées avec 3 résolutions différentes : 5, 20 et 80 km. La sensibilité de détection augmente avec la baisse de la résolution.

La figure 3.12 montre des séries temporelles, à partir du 30 mars 2008 au 11 avril (de 0 à 12 sur l'échelle), du β_{532att} à 5 et 80km de résolution, montrant les valeurs pour les couches détectées sur les 70 traces Calipso disponibles. Les étoiles rouge représentent les valeurs moyennes à l'échéance de la trace Calipso. Ainsi, un même jour, plusieurs traces à des échéances différentes sont disponibles (rarement plus de 3), et pour chacune d'elle, une moyenne sur les différents paramètres optiques est faite. Chaque portion d'orbite est espacée au minimum d'une heure environ.

On inclut à la fois, la détection des couches à 5 et à 80 km de résolution, pour tenir compte de la diversité des couches d'aérosols, selon qu'elle soit plus ou moins étendue spatialement. Notons qu'à faible résolution, c'est à dire, 80 km, la détection d'épisodes enrichies en aérosol se fait plus rare sur l'ensemble de la période. En effet, 5 épisodes dans la basse troposphère libre et 14 dans la haute troposphère sont répertoriés (Fig.3.12(c) et 3.12(d)).

La première chose qui ressort de cette analyse temporelle est la disparité entre les mesures en début et fin de campagne dans les deux partie de la troposphère (Fig. 3.12(c) et 3.12(d)). En effet, la première couche entre 3 et 7 km observée par Calipso s'effectue le 6 ème jour, soit le 4 avril, alors que dans la basse troposphère libre, seule deux, le sont avant ce jour-là, et sur deux traces qui se suivent. Ceci est cohérent avec l'analyse de la variabilité temporelle analysée avec LNG où davantage de couches ont été répertoriées en deuxième partie de campagne.

Le début de campagne s'accompagne d'une zone frontale sur l'ensemble de la région, ce qui peut expliquer le manque de données à basse résolution. Néanmoins, lorsque l'on regarde la série temporelle pour une résolution à 5 km (Fig.3.12(a) et 3.12(b)), dans les

deux parties de la troposphère, des panaches sont détectés tout au long de la période considérée. La basse troposphère compte seulement 4 couches à 80 km de résolution sur l'ensemble de la campagne, ce qui est trop peu pour faire une étude, néanmoins, si on regarde à 5 km, on constate peu de tendance sur le CR^* et une valeur moyenne de 0.3 et peu de dépolarisation, avec toutefois, quelques couches dépolarisantes en début de campagne (Fig.3.15(a) et 3.16(a)).

Dans la moyenne troposphère, où les mesures à grande résolution sont plus importantes, on note une augmentation du β_{532att} pour les couches détectées entre le 10^{ème} et le 13^{ème} jour (8 - 11 avril) passant de 1.2 à 1.6 $10^{-3} \text{ km}^{-1}.\text{sr}^{-1}$. Ce qui traduit un import d'air enrichi en aérosols dans la région (Fig. 3.12(b) et 3.12(d)). Cette augmentation est aussi corrélée avec une augmentation du CR^* , passant de 0.18 à 0.36. Les observations CALIOP sont caractérisées par des masses d'air présentant peu de dépolarisation (0.025) avec, toutefois, deux panaches détectés avec une dépolarisation de l'ordre de 0.04. Ces résultats sont cohérents avec notre analyse des données LNG, dans laquelle apparaissaient des couches présentant de la dépolarisation en fin de campagne associée à une augmentation de color ratio (de 9% à 14%).

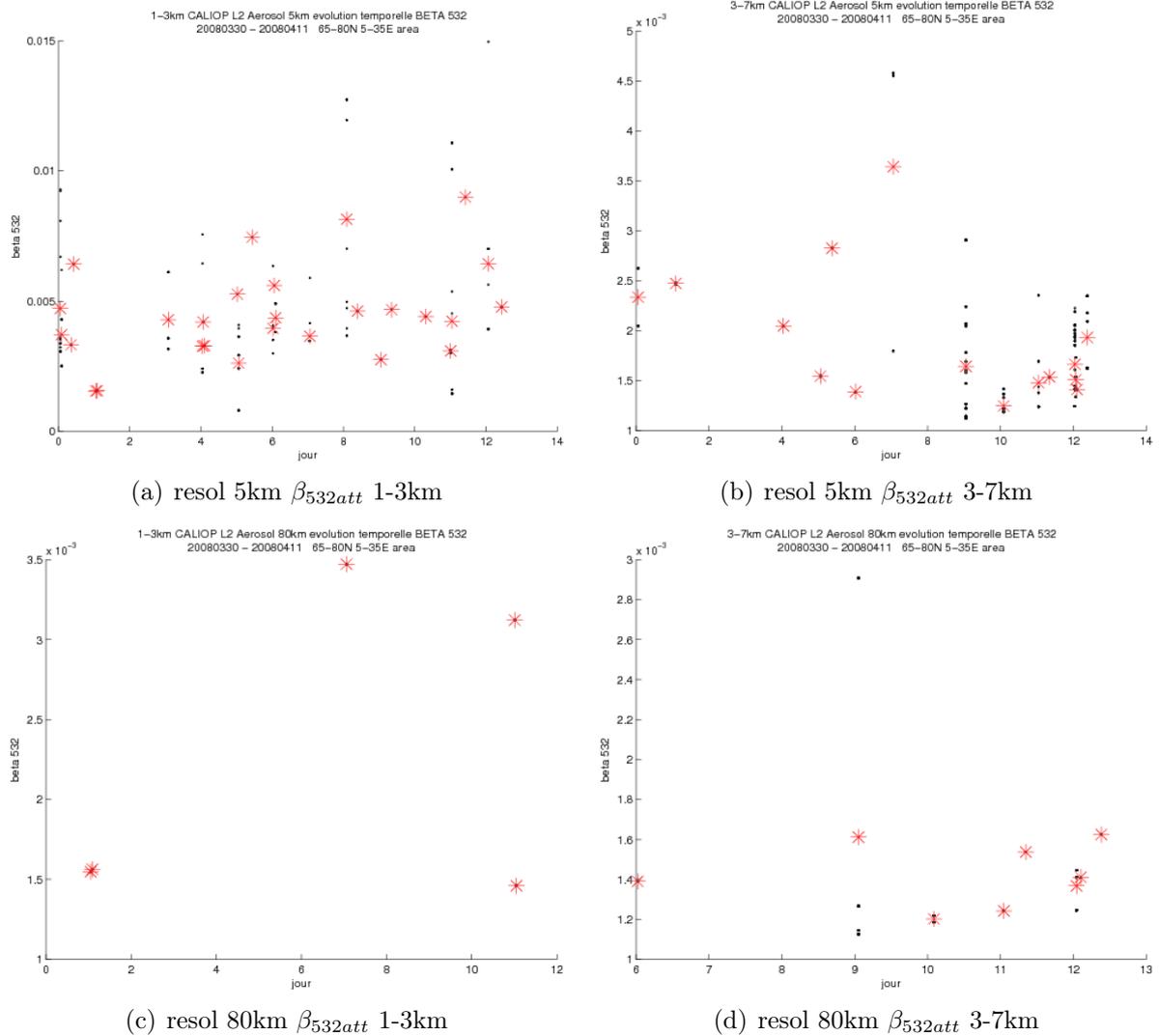


FIGURE 3.12 – Série temporelle entre le 20080330 00UT et 20080411 23h59UT du β_{532att} à 5 et 80 km de résolution pour des couches d'aérosols référencées par les produits Calipso aérosols niveaux 2 de la basse (1-3km) et haute troposphère (3-7km), sur la zone 65-80 °N 5-35 °E. Les points noirs représentent chacun une couche d'aérosol répertoriée à un instant sur l'orbite, les étoiles rouges représentent la moyenne du paramètre optique sur l'ensemble de la portion d'orbite.

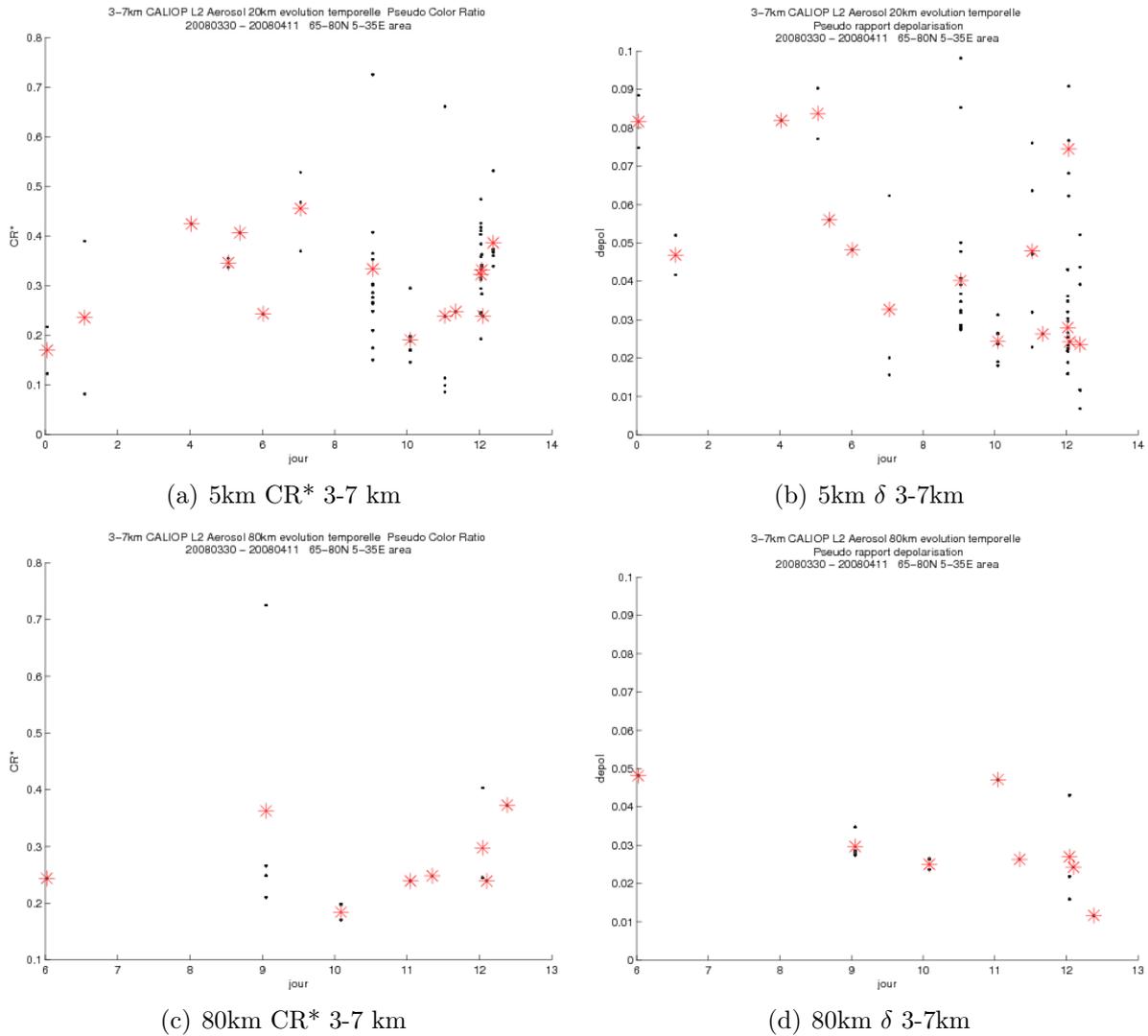


FIGURE 3.13 – Série temporelle entre le 20080330 00UT et 20080411 23h59UT du pseudo rapport de couleur, CR^* et de pseudo dépolarisation, δ à 5 et 80 km de résolution pour des couches d'aérosols référencées par les produits Calipso aérosols niveaux 2 de la haute troposphère (3-7km) sur la zone 65-80 °N 5-35 °E. Les points noirs représentent chacun une couche d'aérosol répertoriée à un instant sur l'orbite, les étoiles rouges représentent la moyenne du paramètre optique sur l'ensemble de la portion d'orbite.

3.4.2 Variabilité spatiale de la distribution des couches d'aérosols issues des produits opérationnels CALIOP.

Les figures 3.14(a) et 3.14(b) montrent les coupes en latitude, entre 65 et 80° N, du β_{532att} à partir d'une détection à 5km de résolution pour la basse (1-3 km) et haute troposphère (3-7 km). Plus la taille du point noir est grande, plus la couche est détectée à une faible résolution. Les étoiles rouges montrent la valeur moyenne pour le paramètre optique considéré, sur une tranche de latitude de 1.5° à partir 65° N. 88 couches sont référencées dans la zone subarctique contre 41 au nord, toutes résolutions confondues, ce qui montre une fréquence d'épisodes enrichies en aérosols deux fois plus importante au sud de 70N, surtout concernant les petits panaches, détectés à 5km de résolution. A 5 km de résolution, on retrouve en partie le rôle de l'orographie et des phénomènes côtiers qui modulent la couverture nuageuse et la distribution de l'aérosol. En effet, nous attendons moins de différences sur le transport de panaches d'aérosols de plus grande étendue, correspondant à du transport aux échelles synoptiques.

Basse troposphère libre (1-3km).

Pour la basse atmosphère, à 80 km l'échantillon est trop petit pour faire une analyse de gradient méridien. A 5 km on distingue :

- un gradient méridien positif de CR^* (0.3 à 0.6) pour les latitudes de 65°N à 72°N et une rediminution du CR^* vers une valeur moyenne autour de 0.4 au-delà de 72°N (zone non couverte par les mesures aéroportées). Ce gradient positif est cohérent avec l'étude des couches LNG même si les gammes de valeurs sont très différentes de celles observées par LNG (0.1-0.2).
- Une diminution de la dispersion des valeurs de δ vers le nord et très peu de couches dépolarisantes au delà de 72°N. Ceci est différent de ce que l'on observe avec LNG. Une augmentation relative de la dépolérisation entre 70 et 72 °N n'est observable que pour les couches à 80 km. (Fig. 3.15(a) et 3.15(b)).

Moyenne troposphère (3-7km).

L'analyse des caractéristiques des panaches d'aérosols, présents dans la moyenne troposphère de la région de Kiruna, montre :

- à 80 km de résolution, que l'échantillon est plus important que pour la basse troposphère (14 couches) (Fig. 3.14(d)). A l'exception d'une couche détectée entre 65°N et 66°N, qui possède des caractéristiques singulières ($\beta_{532att} = 2.9 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ $CR^* > 0.7$), on constate une différence entre les masses d'air se situant au nord et au sud du cercle Arctique. En effet, les masses d'air au sud du cercle Arctique présentent des signaux en β_{532att} ($1.1\text{-}1.4 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ contre $1.2\text{-}1.6 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ au nord) et de CR^* (0.15-0.3 contre 0.25-0.4 au nord) globalement plus faible mais avec une dépolérisation plus importante que les masses d'air arctiques (0.025-0.05 contre 0.01-0.03). On distingue donc, un léger gradient positif de β_{532att} et de CR^* en latitude ainsi qu'un creux de dépolérisation entre 69 et 72°N (Fig. 3.16(c) et 3.16(d)).

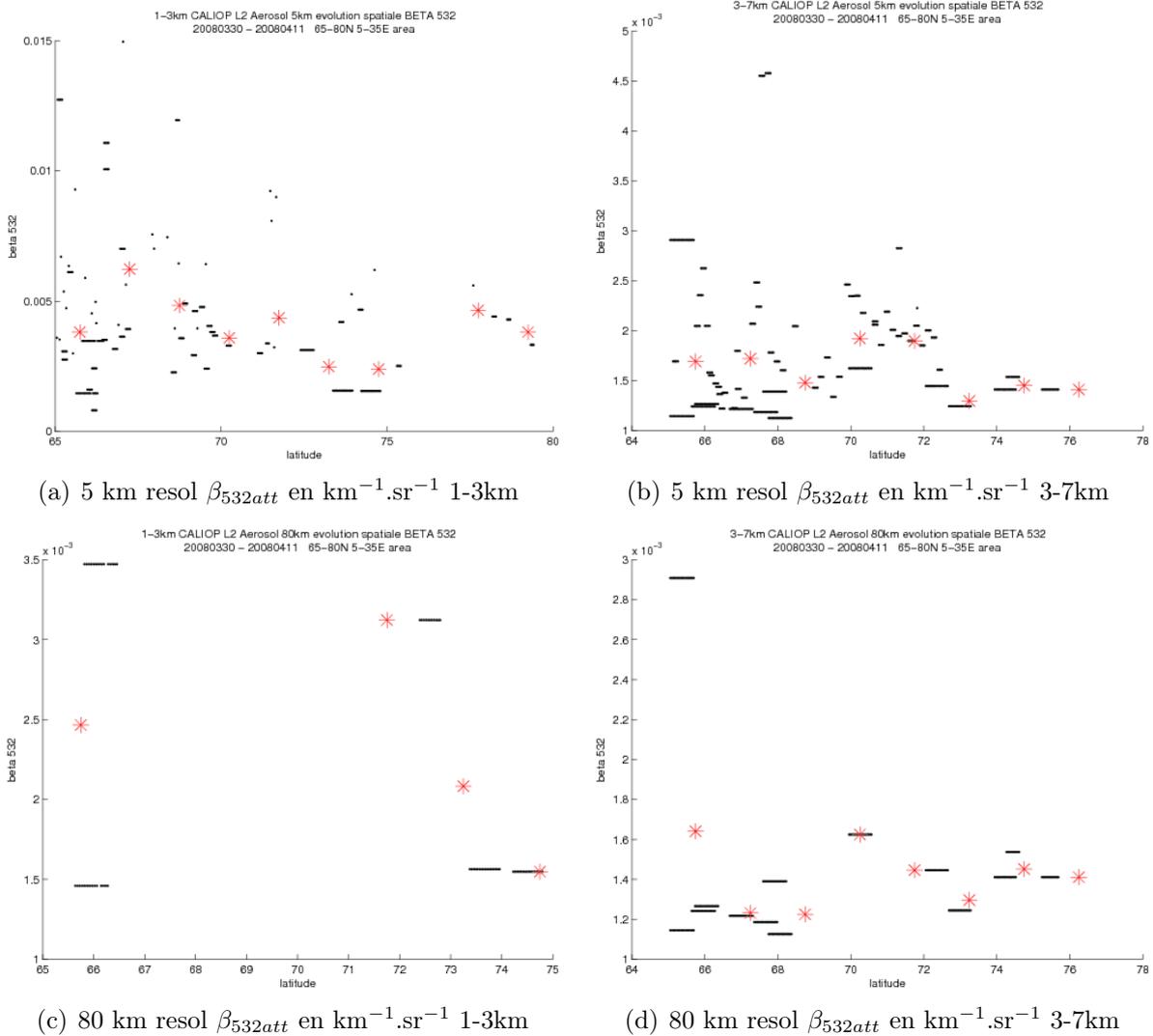


FIGURE 3.14 – Coupe méridienne entre 65 et 80 °N de β_{532att} aux résolutions 5km et 80 km pour des couches d’aérosols référencées par les produits Calipso aérosols niveaux 2 pour la basse (1-3km) et la haute troposphère (3-7km) entre le 30 mars et le 11 avril 2008. Les points noirs représentent chacun une couche d’aérosol répertoriée sur une portion d’orbite à une latitude considérée ; les étoiles rouges représentent la moyenne du paramètre optique tous les 1.5° à partir de 65°N sur l’ensemble de la période.

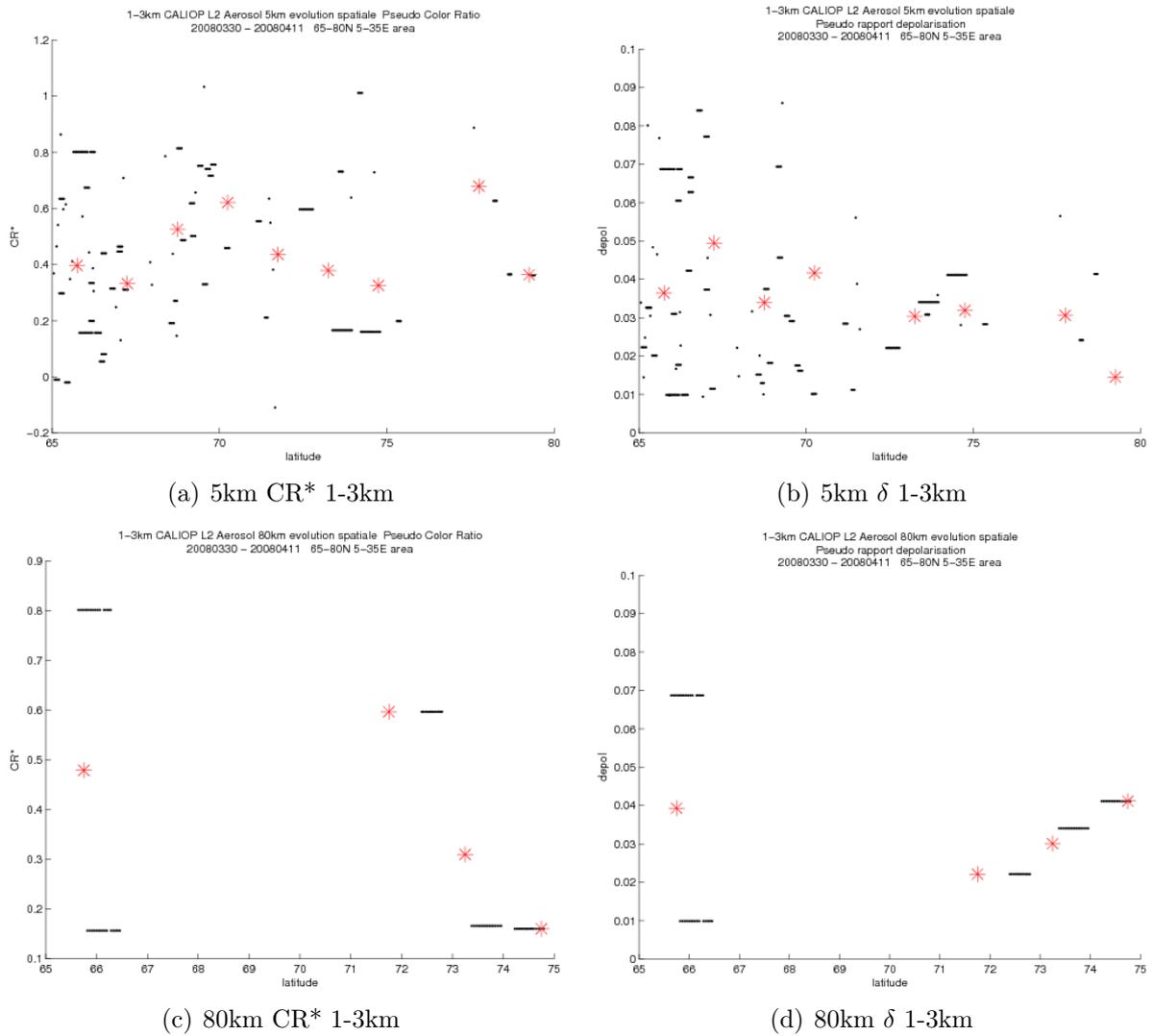


FIGURE 3.15 – Coupe méridienne entre 65°N et 80°N du pseudo rapport de couleur CR* et de dépolarisation δ à 5km et 80 km de résolution pour des couches d'aérosols référencées par les produits Calipso aérosols niveaux 2 de la basse troposphère(1-3km) entre le 30 mars et le 11 avril 2008. Les points noirs représentent chacun une couche d'aérosol répertoriée sur une portion d'orbite à une latitude considérée ; les étoiles rouges représentent la moyenne du paramètre optique tous les 1.5° à partir de 65°N sur l'ensemble de la période.

- à 5km de résolution, on observe une plus grande dispersion sur les valeurs absolues des paramètres optiques au sud de 70N. Ceci n'était pas discernable sur la distribution des couches à 80 km (Fig. 3.16(a) et 3.16(b)). En effet, à 66°N, on trouve des couches possédant des valeurs de CR^* comprises entre 0.1 et 0.7, alors qu'au delà de 72°N, les couches d'aérosols présentent des valeurs, comprises entre 0.25 et 0.4. Comme à 80km de résolution, les masses d'air arctiques observées dépolarisent moins que dans la région subarctique. La diminution des fortes valeurs de CR^* et des fortes valeurs de δ avec la latitude est cohérente avec l'analyse LNG. Il semble ainsi important de prendre aussi en compte les couches observées à basse résolution, même si l'incertitude sur les paramètres optiques est plus grande.

Avant de discuter une comparaison des valeurs absolues des paramètres optiques entre les données LNG et CALIOP, analysons si les résultats obtenus avec les produits opérationnels sont conservés en utilisant directement les produits de niveau 1.

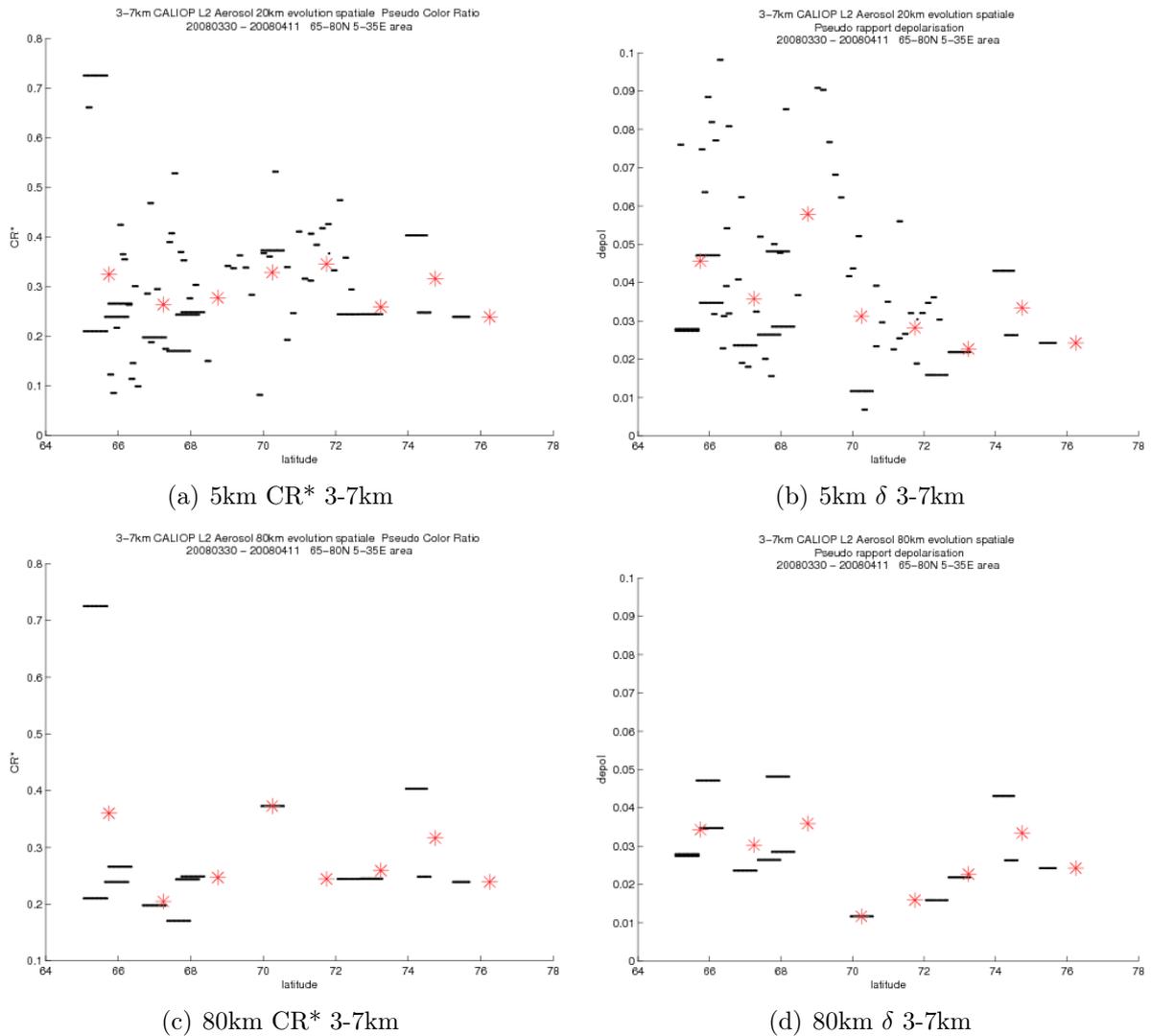


FIGURE 3.16 – Coupes méridiennes entre 65 et 80 °N du pseudo rapport de couleur CR^* et de dépolariation δ à 5 et 80 km de résolution pour des couches d'aérosols référencées par les produits Calipso aérosols niveaux 2 de la haute troposphère(3-7km) entre le 30 mars et le 11 avril 2008. Les points noirs représentent chacun une couche d'aérosol répertoriée sur une portion d'orbite à une latitude considérée, les étoiles rouges représentent la moyenne du paramètre optique tous les 1.5° à partir de 65°N sur l'ensemble de la période.

3.4.3 Variabilité spatiale des paramètres optiques pour les mesures CALIOP niveau 1

Méthodologie pour l'exploitation et la restitution des paramètres optiques à partir des données Calipso niveau 1. Dans ce paragraphe nous restituerons des profils de rapports de diffusion à 532nm, R_{532} , de pseudo color ratio, CR^* et de pseudo rapport de dépolarisation, δ , à partir des données de niveau 1 (voir Annexe CALIPSO). Nous avons étendu la période d'exploitation au 27 mars pour prendre en compte un plus grand nombre de traces. Ainsi, on utilise 84 traces CALIPSO comportant 21 traces de nuit et 63 traces de jour. Ceci permet de réduire l'erreur, notamment en prenant en compte un plus grand nombre de traces de nuit, où le rapport signal sur bruit est plus élevé. Pour rappel, ces données ont une résolution horizontale de 333 mètres et verticale de 30 mètres. Pour obtenir des données comparables à ce qui a été fait précédemment, nous moyennons tous les 240 profils afin d'avoir une résolution horizontale en sortie de 80 km. Ensuite, les coefficients de rétrodiffusion atténuée à 532 nm et 1064 nm sont recalculés à partir du β_{total} pour chaque longueur d'onde et en le divisant par un profil de transmission Rayleigh et de transmission par l'ozone. Les profils verticaux de diffusion Rayleigh et d'ozone sont obtenus à partir du modèle utilisé par les algorithmes opérationnels de CALIOP. Une fois ces coefficients pris en compte, les profils de rapport de diffusion et de CR^* peuvent être calculés. Notons qu'ici, nous supposons d'abord l'hypothèse, comme pour LNG, que la transmission particulière est égale à 1 au dessus de la couche d'aérosol restituée à une altitude z . Cette hypothèse engendre une erreur plus importante pour CALIOP compte tenu de l'influence de l'épaisseur optique au dessus de 7 km qui vient s'ajouter à celle de la zone 1-7 km.

Il a été utilisé, un masque nuage, afin de ne tenir compte uniquement que des contributions ciel clair et aérosol. Cela permet d'éviter la détection de pics, qui seraient en fait, des artefacts liés à la présence de nuages. Ce masque est construit à partir des produits opérationnels de niveau 2 "nuage" ayant à une résolution horizontale de 333 mètres, soit la même résolution que pour les produits de niveau 1. Pour un profil de niveau 1, si à une altitude donnée, correspond sur le produit de niveau 2, un sommet de nuage, alors toutes les données entre cette altitude et la surface ne seront pas prises en compte.

A partir de cette étape nous disposons de profils moyennés sur 80 km disposant d'un masque nuage. La restitution des profils moyens de CR^* se fait avec un critère supplémentaire. A savoir, qu'il sera représenté uniquement les CR^* associés à des valeurs de rapports de diffusion $R_{532} > 1.2$ pour restreindre le calcul à des zones contenant de l'aérosol. Les paramètres optiques sont ensuite moyennés tous les 1.5° en latitude. Les figures 3.21(a), 3.21(b) et 3.21(c) montrent les coupes de R_{532} , CR^* et δ entre 68° et 80° N calculés pour les 84 traces Calipso. On constate quatre zones distinctes : trois, avec une contribution en aérosol marquée avec des rapports de diffusion > 2.2 , situées :

- entre 65° et 71° N entre 7 et 9 km.
- entre 71° et 74° N entre 1 et 1.5 km.
- au delà de 75° N entre 5 et 7 km.

et une zone propre, entre 71° N et 74° N, dans toute la moyenne troposphère libre.

Dans la basse troposphère libre de la zone d'exploré pendant la campagne, on note un gradient positif sud nord de CR^* , entre 69° N et 73° N (Fig. 3.21(b)), alors que dans la

moyenne troposphère, on distingue un gradient inverse. Par ailleurs, on constate très peu de dépolarisation dans cette zone à cette période, pour l'ensemble de la troposphère. Ceci est cohérent avec ceux que l'on a vu avec LNG. De plus, on note qu'entre 65°N et 71°N les masses d'air présentent davantage de dépolarisation qu'au nord ce qui a été vu sur les produits opérationnels (Fig.3.16(b) et 3.16(d)).

Par contre, on relève des valeurs absolues de CR^* toujours comprises entre 0.2 et 0.7, c'est à dire supérieur d'un facteur 2 à 3 à ce que l'on a pu observer avec les analyses des données LNG et même supérieures à ce que l'on a pu observer à partir des produits opérationnels où les valeurs moyennes de CR^* ne dépassaient pas les 0.5.

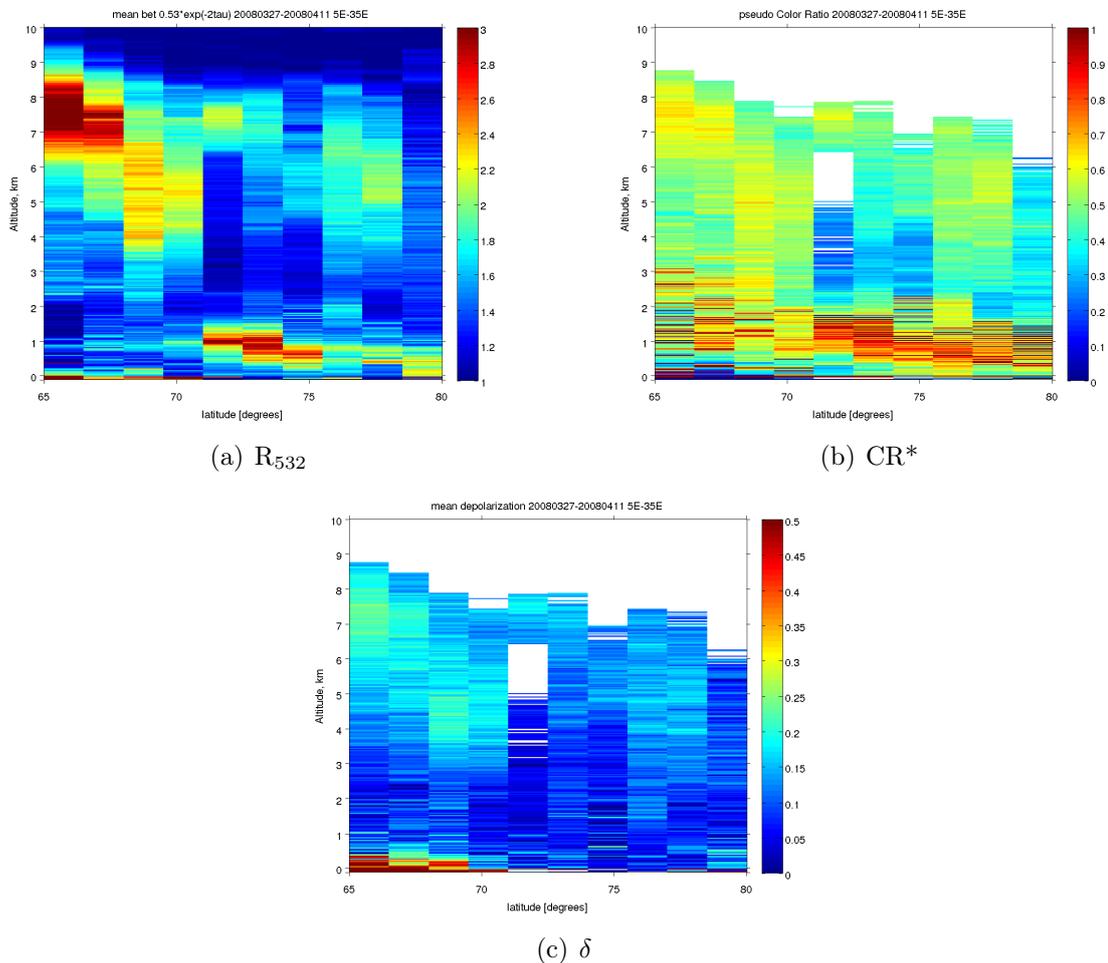


FIGURE 3.17 – Coupe méridienne (65-80N) des rapports de diffusion à 532 nm, de CR^* et δ à partir des données Calipso niveau 1 pour des profils moyennés tous les 80 km puis tous les 1.5° avec l'application d'un masque nuage entre le 20080327 et 20080411.

3.4.4 Discussion des différences observées sur les paramètres optiques.

Afin de discuter des différences observées sur les valeurs de CR^* obtenues avec LNG et CALIOP, trois facteurs doivent être pris en compte :

- les différences entre les modèles de diffusion Rayleigh utilisés dans chaque analyse.
- la non prise en compte de l’extinction aérosol au dessus de 6 km pour l’analyse des données CALIOP.
- les différences d’étalonnage des voies 532 et 1064 nm entre les deux instruments.

Pour discuter le rôle de chacun de ces facteurs, on réalise des études séparées sur les traces de jour et de nuit pour le lidar CALIOP.

Différences entre les modèles Rayleigh utilisés dans l’analyse LNG et CALIOP.

Dans l’analyse des profils LNG et CALIOP, chaque profil est divisé par un profil de rétrodiffusion et de transmission associé à la diffusion Rayleigh des molécules présentes dans l’atmosphère. Dans l’analyse LNG, les profils de diffusion Rayleigh sont calculés à partir d’un modèle standard atmosphérique US76 ([U.S. Standard Atmosphere, 1976]) alors que les profils disponibles dans les données CALIOP sont obtenus à partir du modèle Global Modeling and Assimilation Office (GMAO). La figure 3.18 montre une coupe entre 0 et 5 km de rétrodiffusion (Fig.3.18(a)) et de transmission (Fig.3.18(b)) Rayleigh à 532 nm entre les deux modèles utilisés. On y voit une différence systématique, mais inférieure à 10% entre les deux modèles sur la diffusion, ce qui implique une erreur de l’ordre de 1% sur la transmission, à 1 km d’altitude. On surestime donc très légèrement le CR^* dans l’analyse de LNG par rapport à CALIOP. Néanmoins, ceci n’explique pas le facteur 2 ou 3 rencontrés sur les pseudo color ratio obtenus entre les deux instruments.

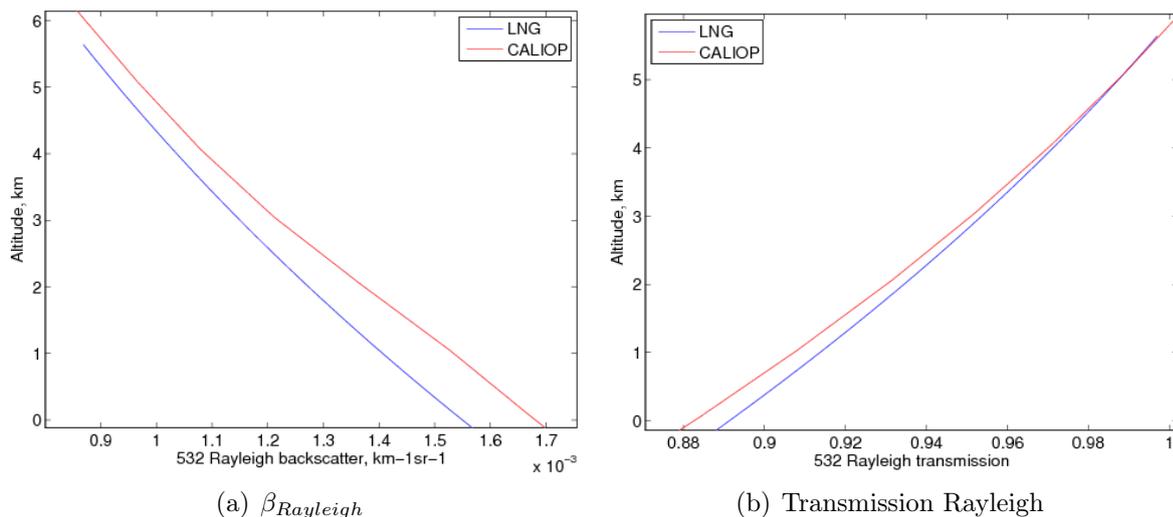


FIGURE 3.18 – Comparaison des modèles de diffusion et transmission Rayleigh utilisés par LNG et CALIPSO. Profils de rétrodiffusion en $km^{-1}.sr^{-1}$ (à gauche) et de transmission Rayleigh (à droite). En bleu, le modèle US76 utilisé dans les analyses LNG, en rouge, le modèle utilisé par CALIOP.

Contribution de la transmission particulaire.

Ce facteur est faible pour l'analyse des données LNG car l'intégrale de l'aérosol entre z et 5 km, altitude de vol de l'avion, est souvent négligeable sauf pour des niveaux en dessous de 1 km correspondant à la couche limite. Pour CALIOP, ce terme est calculé entre z et le sommet de l'atmosphère, peut être significatif et conduire à des différences sur les rapports de diffusion à 532 nm et les CR^* . Le profil moyen de $\beta_{aerosol}$ à 532 nm (Fig.3.19) à 71°N permet une estimation de la transmission aérosol au dessus de 6km pendant la campagne. En calculant l'aire en dessous de la courbe entre 6 et 9 km puis en multipliant par la fonction de phase à 532 nm, de l'ordre de 77, on trouve une épaisseur optique de 0.086 et une transmission aérosol de 0.84. Ceci implique :

$$CR^* = \frac{CR^*_{LNG}}{CR^*_{CALIOP}} = \frac{1}{0.84} \quad (3.1)$$

Dans l'analyse CALIOP des données de niveau 1, on surestime donc, de l'ordre de 20 %, les valeurs de pseudo Color Ratio, CR^* . Cette correction est toujours insuffisante pour expliquer les différences entre les mesures CALIOP et LNG de CR^* .

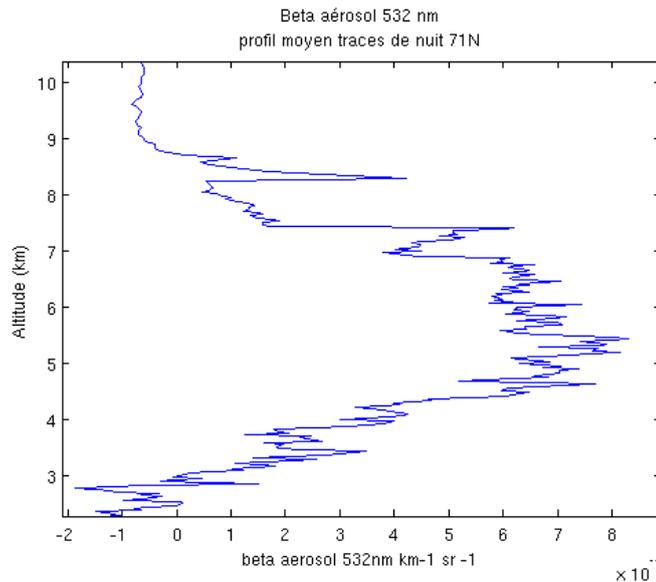


FIGURE 3.19 – Profil moyen de rétrodiffusion aérosol à 532 nm ($\text{km}^{-1}.\text{sr}^{-1}$), $\beta_{aerosol532}$ à 71°N moyenné sur 1.5 ° pour CALIOP niveau 1 entre le 20080327 et 20080411 sur la zone 65-80°N et 5-35°E.

Étalonnage des voies 532 et 1064 nm à partir des profil moyens.

Le dernier paramètre pouvant expliquer une différence sur les CR*, est la différence d'étalonnage effectuée aux deux longueurs d'onde sur les données CALIOP et LNG.

Sur CALIOP, le calcul des facteurs d'étalonnage au canal 532 nm est effectué la nuit, en raison d'un meilleur rapport signal sur bruit. Il suppose qu'entre 30 et 34 km d'altitude, seule la contribution moléculaire existe. L'IR, en raison d'une plus faible différence de diffusion entre zone propre et couche d'aérosol à l'altitude d'étalonnage du canal 532, est étalonné à partir de la calibration à 532 nm par une méthode de comparaison au niveau des cirrus, où la dépendance en longueur d'onde des signaux transmis est assez stable. Le jour, la calibration des deux canaux s'effectue par une interpolation des valeurs des coefficients calculés de nuit. Ce qui, dans notre cas, peut engendrer des erreurs conséquentes vu que la majorité des traces utilisées, sont des traces de jour.

Sur la coupe en latitude de R_{532} , on distingue deux zones sans aérosols, la stratosphère au dessus de 9 km et aussi autour de 3 km, à 72.5°N (Fig.1.15(a)) Dans ces zones claires, le rapport de diffusion à 532 nm doit être très proche de 1 et celui à 1064 nm ne doit pas excéder $1+16*(R_{532}-1)$ pour d'avoir une valeur réaliste du rapport de couleur.

De jour, entre 9 et 10 km, la valeur moyenne du rapport de diffusion à 72.5°N pour le canal 532 nm, est de 1.03 et de 1.27 à 1064nm. Le rapport $\frac{R_{1064}-1}{R_{532}-1}$ est égal à 9 (Fig. 3.20(a) et 3.20(b) (courbe bleue)). En revanche, entre 2.5 et 3.6 km la valeur du rapport de diffusion à 532 nm, corrigée de la transmission aérosol (20%), s'élève à 1.11 et celui à 1064 nm à 4.5 (courbe bleue sur la figure 3.20(b)) Cette dernière valeur est trop forte d'un facteur 1.6 pour respecter le facteur 16 entre les deux (R-1). De même, entre 6 et 8 km la couche d'aérosol est caractérisée par un rapport $\frac{R_{1064}-1}{R_{532}-1} = \frac{24}{1.3} = 17$ alors que la valeur pour une telle couche non propre doit être nettement inférieure à 16 (cas d'une diffusion Rayleigh). On corrigera donc les profils de jour, uniquement sur le canal 1064nm en divisant chaque valeur de β_{att} d'un facteur 1.6. Le rapport des R-1 tombe ainsi à 10 pour la couche d'aérosol observée. Le profil corrigé à 72.5N est représenté par la courbe rouge sur la figure 3.20(b).

Concernant les profils de nuit, entre 9 et 10 km, le rapport de diffusion à 532 nm vaut 0.92 (courbe bleu sur la figure 3.20(c)), il est donc nécessaire d'appliquer un facteur correctif de 1.09 pour remonter le rapport de diffusion à 1.003. Après correction (courbe rouge sur la figure 3.20(d)), dans la seconde zone claire, entre 3 et 3.5 km, R_{532} vaut 1.11 (même valeur que pour les traces de jour). Le profil dans l'infrarouge ne semble pas avoir besoin de correction avec le rapport de diffusion, R_{1064} , égal à 2.18 entre 3 et 3.5km, cette valeur est inférieure à la valeur maximale possible de 2.79. Pour la couche d'aérosol entre 5 et 8 km le rapport $\frac{R_{1064}-1}{R_{532}-1}$ est égal à 11.5, ce qui indique aussi la bonne qualité de l'étalonnage de nuit.

Pour résumer, les facteurs correctifs appliqués aux profils moyens sont :

- traces de jour : correction du canal Infra Rouge par un facteur multiplicatif de 1/1.6.
- traces de nuit : correction du canal vert d'un facteur multiplicatif de 1.09.

Il ressort de cette étude une surrestimation possible des CR* CALIOP par un facteur 1.6 pour les traces de jours. La figure 3.21 montre les coupes méridiennes des trois paramètres optiques, avec une moyenne faite en altitude tous les 300 m. On retrouve les mêmes zones enrichies en aérosols écrites précédemment avec des valeurs de CR* mainte-

nant comprises entre 0.1 et 0.35. Le tableau 3.5, montre un comparatif entre les valeurs moyennes restituées à partir des données niveau 1 et obtenues par l'exploitation des produits opérationnels CALIOP, pour les deux parties de la troposphère. On constate que les gammes de valeurs sont semblables pour les deux approches compte tenu des incertitudes importantes. Ceci est essentiellement dû au fait, que la majorité des observations sont faites de jour et sont caractérisées par un faible rapport signal sur bruit. Néanmoins, cette approche, nous montre qu'on pourra s'appuyer sur ces produits opérationnels dans la suite, pour des études lagrangiennes.

Enfin, on constate toujours des valeurs de CR* supérieures d'un facteur 2 entre LNG et CALIOP. Ceci est probablement dû à des différences sur les procédures d'étalonnage entre LNG et CALIOP.

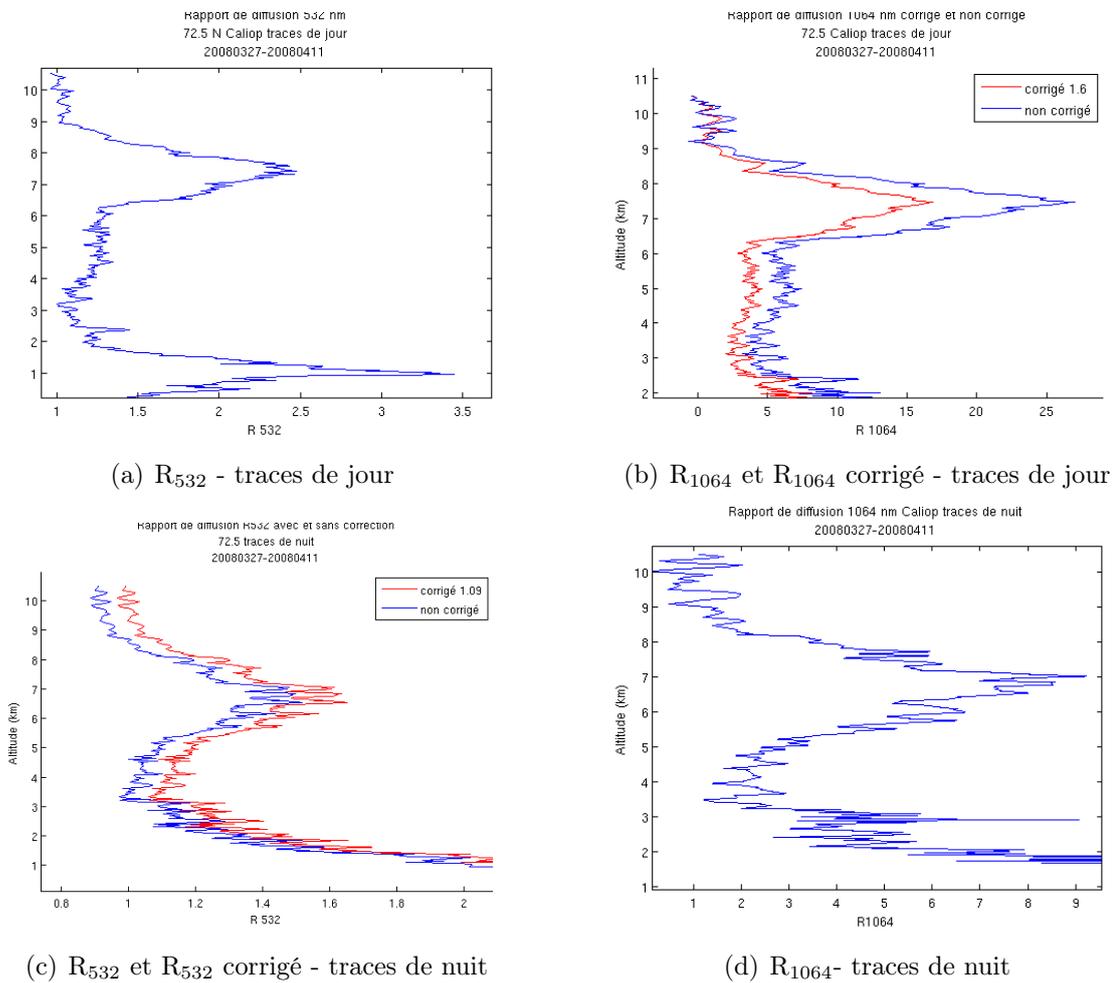


FIGURE 3.20 – Rapport de diffusion moyenné sur 1.5° à 532 nm et 1064 nm (corrige d'un facteur 1/1.6 en rouge et non corrigé en bleu) à 72.5°N concernant les traces de jour Calipso (en haut) et rapport de diffusion moyenné sur 1.5° à 532 nm (corrige d'un facteur 1.09 en rouge et non corrigé en bleu) et 1064 nm à 72.5°N concernant les traces de nuit Calipso entre le 27/03/2008 et 11/04/2008 sur la zone 65°N-80°N et 5°E-35°E issue des données de niveau 1.

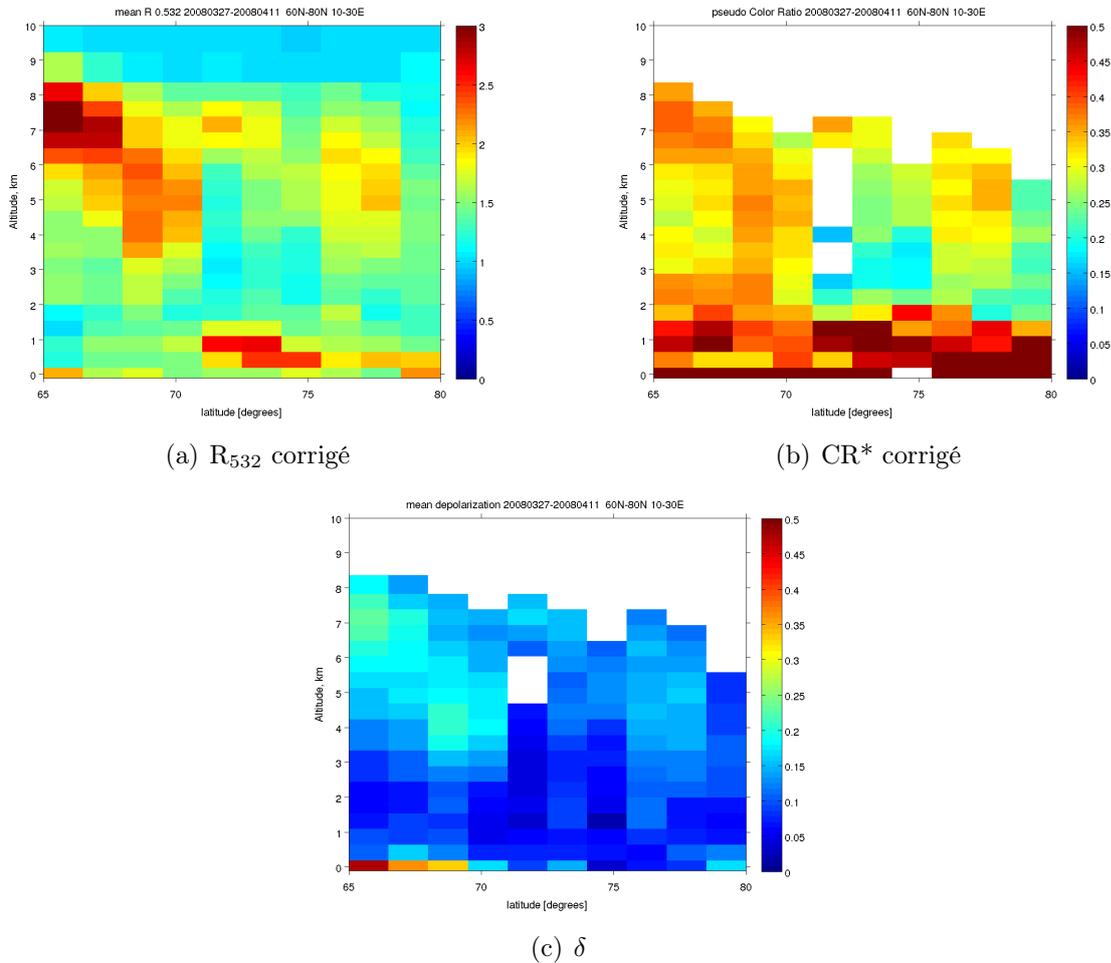


FIGURE 3.21 – Coupe méridienne (65-80N) des rapports de diffusion à 532 nm, de CR^* et δ à partir des données Calipso niveau 1 corrigées d'un facteur 1.09 sur le 532 nm (profils de nuit) et d'un facteur 1/1.6 pour le canal 1064 nm (profils de jour) pour des profils moyennés tous les 80 km puis tous les 1.5° avec l'application d'un masque nuage entre le 27/03/2008 et 11/04/2008. Enfin, ces profils sont moyennés en altitude tous les 300 mètres.

CALIOP	<70N		>70N	
	Niv1	Niv2	Niv1	Niv2
Basse tropo (1-3 km)				
$\beta_{att532} \cdot (10^{-3} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1})$	1.5±1.1	4.8± 2.5	1.6± 1.2	4.1±2.2
CR*	0.30±0.3	0.4± 0.4	0.35±0.4	0.48±0.42
δ	0.08±0.07	0.04±0.08	0.07±0.09	0.04±0.13
Moyenne tropo (3-7km)				
$\beta_{att532} \cdot (10^{-3} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1})$	1.9±1.4	1.9± 1.2	1.5± 1.3	1.9±1.1
CR*	0.33±0.4	0.3± 0.3	0.28±0.2	0.32±0.15
δ	0.16±0.10	0.06±0.05	0.12±0.05	0.03±0.1

TABLE 3.5 – Comparaison pour la basse et moyenne troposphère (1-3 et 3-7 km) entre les données niveau 1 et les produits aérosol opérationnels CALIOP niveau 2 à 5km de résolution. Moyenne de β_{532att} , CR*, δ pour chaque niveau de données pour la partie subarctique (<70°N) et arctique(>70°N).

3.5 Conclusion.

Dans ce chapitre, nous avons discuté de la variabilité spatiale et temporelle des couches d'aérosols observées tout le long de la campagne de mesure, en liaison avec celles des régimes de transport. Ceci a été réalisé à partir des simulation FLEXPART à 6 jours montrant les contributions des régimes de transport arctique, asiatique et sud. Nous avons vu que la troposphère explorée des régions <71°N, a été majoritairement influencée par des transports de secteur sud. Au delà de 71°N, correspondant à l'extension maximale du front polaire, les régimes de transport arctique et asiatique dominant, excepté pour les hautes altitudes (>5.5 km) où le transport à longue distance par le flux de sud subsiste. Notons que la fin de la campagne, fut caractérisée par une plus grande contribution des régimes de transport provenant d'Asie.

La climatologie des 89 couches d'aérosols observées par le lidar LNG, couvre la zone comprise entre 69°N et 72°N. Ces couches ne présentent pas ou peu de dépolarisation (sauf pour quatre d'entre elles) et des CR* assez faibles, compris entre 0.10 et 0.25 mais qui augmentent vers le nord dans la basse troposphère. Ceci correspond en général à l'apport des masses d'air asiatique où la fraction des grosses particules est plus importante. La haute troposphère est dominée au nord par de plus faibles pseudo color ratio (~0.1), ce qui témoigne de la présence de plus petites particules advectées dans le flux de sud depuis l'Europe. Ceci peut s'expliquer par le passage, dans les zones frontales, située au sud de 71 °N, qui s'accompagne du lessivage des plus grosses particules. Enfin, cette climatologie a révélée la présence de trois couches présentant de la dépolarisation ($\delta > 1.9\%$) associée à des valeurs de pseudo color ratio relativement élevé (>0.14). L'une est issue d'un transport de secteur sud, alors que les deux autres d'un transport de secteur nord. On s'attend à ce que ces panaches soient influencés par la présence de poussières désertiques.

La seconde partie de la campagne correspond à une augmentation du CR* passant de 0.18 à 0.36, ce qui est cohérent avec une plus grande influence des masses d'air âgées dans la région à cette période. L'intercomparaison dans la zone d'exploration, entre les données LNG et les produits opérationnels aérosol de niveau 2 à haute résolution (5 km), montre

des résultats similaires à ceux du lidar LNG c'est à dire : une augmentation relative de CR^* d'un facteur 2 entre $65^\circ N$ et $72^\circ N$ au dessous de 3 km, une diminution de la dispersion entre $65^\circ N$ et $72^\circ N$ au dessus de 3 km (donc des fortes valeurs) et peu de dépolarisation au nord. Les données de niveau 1 moyennées sur 1.5° et filtrées des nuages sont aussi bien corrélées avec les variations en latitude des données LNG. On ne remarque pas de différences notables entre les climatologies des couches basées sur les données CALIOP niveau 1 filtrées des nuages et les données de niveau 2.

La différence importante sur les valeurs absolues de CR^* obtenues pour les analyses LNG et CALIOP, proviennent des différences d'étalonnage entre les deux instruments. Ainsi, nous avons vu que les signaux de CALIOP devaient être corrigés le jour, d'un facteur $1/1.6$ sur le canal 1064 nm, et d'un facteur 1.09 sur le canal 532 nm de nuit. L'incertitude sur la valeur absolue des données LNG est dominée par la normalisation dans les zones propres. Néanmoins, les variations relatives des paramètres sont similaires pour les mesures aéroportés et CALIOP, et ceci permet d'envisager des études lagrangiennes combinant ces deux jeux de données.

Chapitre 4

Etude lagrangienne des propriétés optiques des couches observées pendant la campagne.

4.1 Introduction

Suite à la climatologie effectuée à partir des données LNG dans le chapitre précédent, nous avons identifié des couches le 31 mars, le 8 (1er et 2ème vol) et le 11 avril donc à des phases différentes de la campagne, pour des valeurs de dépolarisation très variables et qui permettent aussi, d'avoir plusieurs exemples de transport : d'Europe de l'ouest, d'Asie ou de Russie occidentale. Nous allons dans cette partie, présenter une analyse détaillées de ces quatre vols avec dans un premier temps une analyse des mesures lidar comparées aux mesures in-situ pour vérifier que la variabilité des paramètres optiques est cohérente avec celles des distributions en taille mesurées par le PCASP et le SMPS. Puis, on présentera les études lagrangiennes sur l'évolution des propriétés optiques effectuées par un couplage modèle rétrotrajectographique FLEXPART et des données CALIOP le long des rétrotrajectoires.

4.2 Variabilité des propriétés optiques associée aux données in-situ.

4.2.1 Analyse des profils verticaux du lidar LNG.

Les figures 4.1(a), 4.1(b), 4.2(a), 4.2(b), et 4.2(c) montrent les coupes verticales et en latitudes de rétrodiffusion total dans le canal Infrarouge pour les portions de vols où ont été observées les couches sélectionnées. Les lignes blanches sont localisées où sont étudiés les profils . Les rectangles violets montrent les zones où les mesures in-situ sont disponibles.

Pour le 31 mars (vol 25, Fig.4.1(a)) et le 8 avril (1ère partie du vol 31, Fig.4.1(b)), les couches d'aérosols ne correspondent pas à des mesures in-situ. Les couches ayant une

valeur inférieure à 1.5 en rapport de diffusion à 1064 nm ne seront pas discutées.

La première couche, observée le 31 mars (que l'on nommera ensuite couche I), se situe autour de 2.5 km d'altitude à 71.9°N au dessus d'une couche nuageuse et au nord d'une zone frontale à 71.5°N (forts coefficients de rétrodiffusion). La couche (couche II), observée pendant la première partie du vol du 8 avril (vol 31) est située à 70°N autour de 3 km d'altitude. Les rapports de diffusion, $R(z)$, aux trois longueurs d'onde sont présentés sur la figure 4.3(a) et 4.3(b) pour chacune de ces couches.

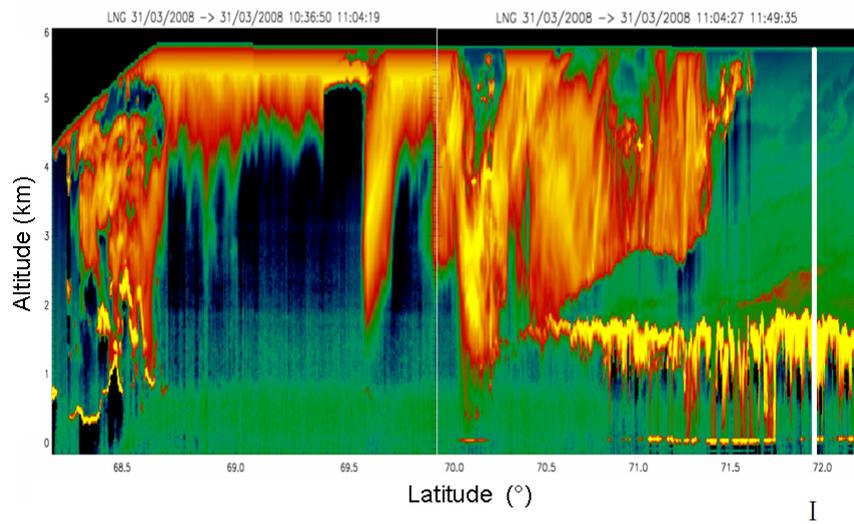
La couche I est caractérisée par de forts rapports de diffusion à 532 et à 1064 nm avec des valeurs respectivement de 2 et 4.7. Le rapport de diffusion polarisé perpendiculaire à 355 nm est supérieur à 1.5, ce qui montre que cette couche présente de la dépolarisation. La couche II est caractérisée par des rapports de diffusion plus faibles, avec des valeurs à 532 autour de 1.5 et supérieures à 3, à 1064nm. En supposant un lidar ratio (rapport d'extinction sur rétrodiffusion) de 70sr, correspondant à de l'aérosol de pollution [Catrall et al.(2005)], les valeurs de rapport de diffusion à 532nm, correspondent à des épaisseurs optique aérosol τ_a de l'ordre de 4%. Pour ces deux couches, les rétrotrajectoires sont calculées par FLEXPART toutes les quinze minutes. La position moyenne des 5 clusters est donnée toutes les 24 heures et montre que la couche I provient de la région Sibérienne (Fig.4.4(a)) et d'Europe centrale, pour la couche II (Fig.4.4(b)).

La coupe verticale de rétrodiffusion totale à 1064 nm, entre 70.2°N et 71.8°N, pour la seconde portion du vol 31, du 8 avril, montre une fine couche d'aérosols entre 3.5 et 4.2 km, au delà 71.4°N, traversée par l'avion à partir de 70.6 °N et qu'on nommera dans la suite, couche III (Fig.4.2(a)). L'analyse des rétrotrajectoires calculées par le modèle Flexpart, nous indique que la zone entre 70.3°N et 70.8°N où les mesures in-situ sont effectuées, est comparable à la couche d'aérosols. En effet, elles correspondent toutes deux à des masses d'air ayant connu la même voie de transport, c'est-à-dire, provenant d'Arctique avec à la fois un passage au dessus du détroit de Béring (Nord-Est de l'Asie) et de l'Amérique du nord (Fig.4.5). Ainsi, les masses d'airs de ces deux zones peuvent être considérées comme étant issues des mêmes sources, on peut donc mettre en relation les propriétés optiques déterminées par l'analyse des données LNG et les mesures in-situ pour ce panache. Le profil de rapport de diffusion (Fig. 4.3(c)) montre 3 couches d'aérosols, mais seule, celle située entre 3.5 et 4.2 km à 71.4°N, possédant un rapport de diffusion à 532 nm inférieur à 1.25 ($\tau_a \sim 2\%$) nous intéresse dans cette analyse. Les rapports de diffusions à 355 nm (parallèle et croisé) sont faibles avec des valeurs inférieures à 1.2.

Sur la coupe verticale de rétrodiffusion totale dans l'IR, du vol transit au dessus du continent, le 8 avril (vol 32), on distingue une couche (couche IV) dont les caractéristiques sont similaires à celles de la couche sélectionnée, le même jour, plus au nord (Fig.4.2(b)). Ce panache s'étend sur toute la zone du vol, entre 68.8°N et 69.58°N, entre 3 et 4.5 km d'altitude. La figure 4.3(d) montre le profil moyen sur 20 secondes avec des rapports de diffusions de 4 et 1.25 à 1064 et 532 nm. Contrairement à la couche III, à 355 nm le rapport de diffusion de la voie perpendiculaire approche les 1.5 contre 1.3 pour la voie parallèle, ce qui révèle de la dépolarisation dans cette couche. La figure 4.6 montre les rétrotrajectoires au niveau de la couche IV pour le profil, ainsi que pour la zone où les mesures in-situ sont réalisées. Les deux zones sont composées d'air provenant de la même région et plus précisément d'Europe orientale.

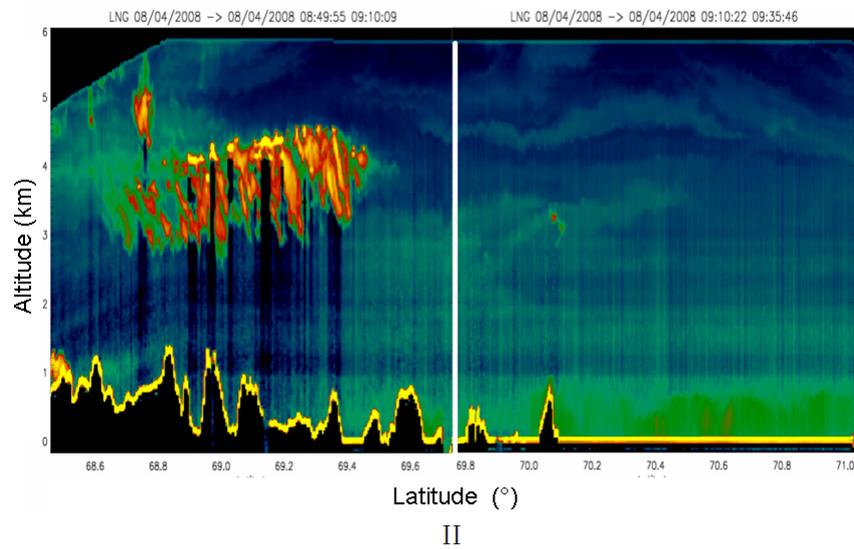
Enfin, pour le 11 avril, sur la coupe verticale de rétrodiffusion total dans l'I.R, la couche

VOL 25 31 Mars 2008



(a) 31 mars v25

VOL 31 08 April 2008



(b) 8 avril v31

FIGURE 4.1 – Coupe verticale de rétrodiffusion à 1064nm mesurée pour le le vol 25 du 31 mars, entre 68° et 72 °N et le vol 31 du 8 avril, entre 68.5° et 71°N. Les lignes blanches représentent les profils I et II.

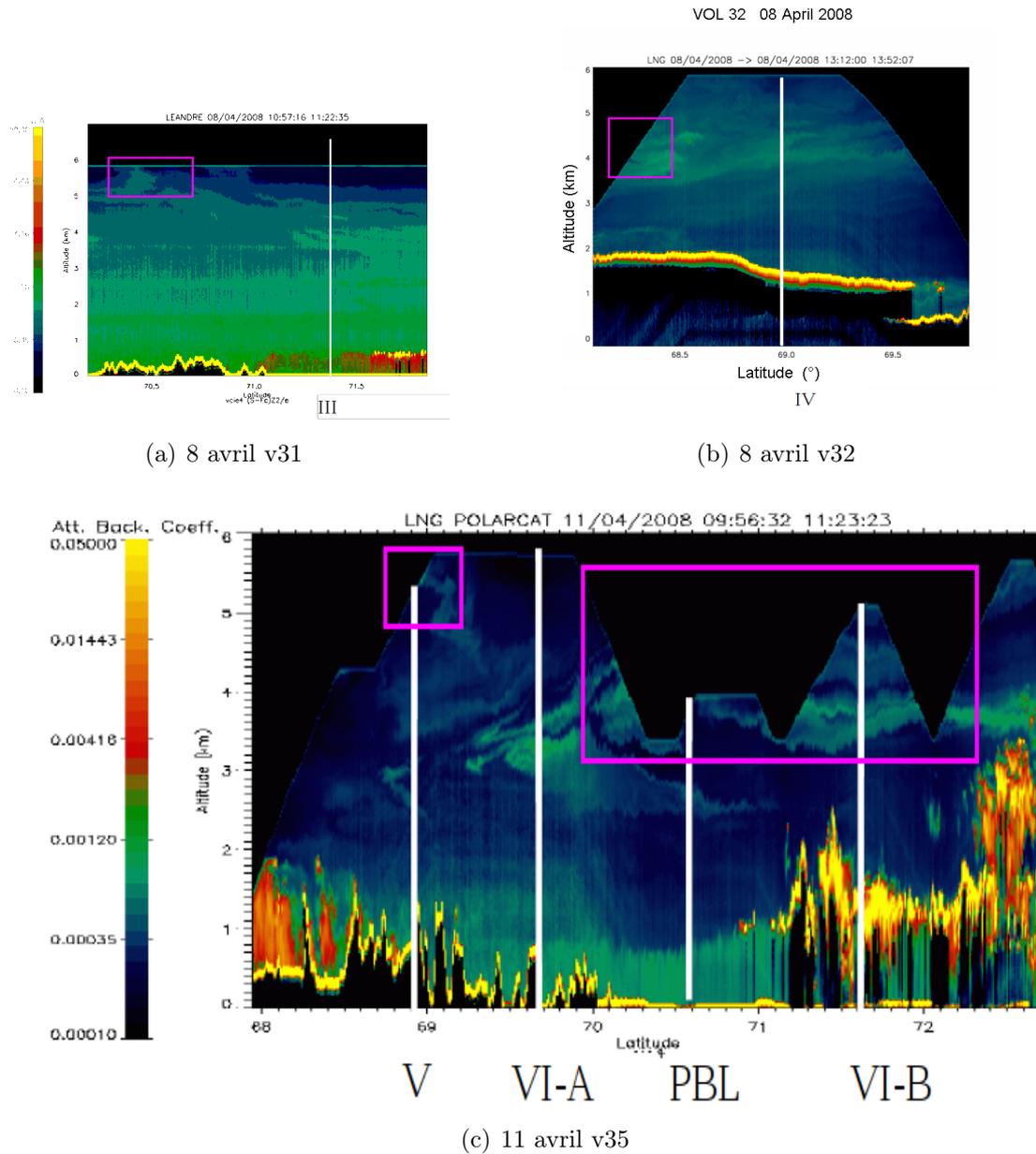


FIGURE 4.2 – Coupe verticale de rétrodiffusion à 1064nm, mesurée pour la deuxième partie du vol 31, entre 70° et 72°N (Fig.4.2(a)), le vol 32 du 8 avril, entre 68° et 70°N (Fig.4.2(b)), et le vol 35 du 11 avril entre 68° et 72.5 °N (Fig.4.2(c)). Les lignes blanches représentent les six profils, III, IV, V, VI-A, PBL et VI-B. Les rectangles violets marquent les zones des mesures in-situ associées aux profils.

4.2. Variabilité des propriétés optiques associée aux données in-situ.

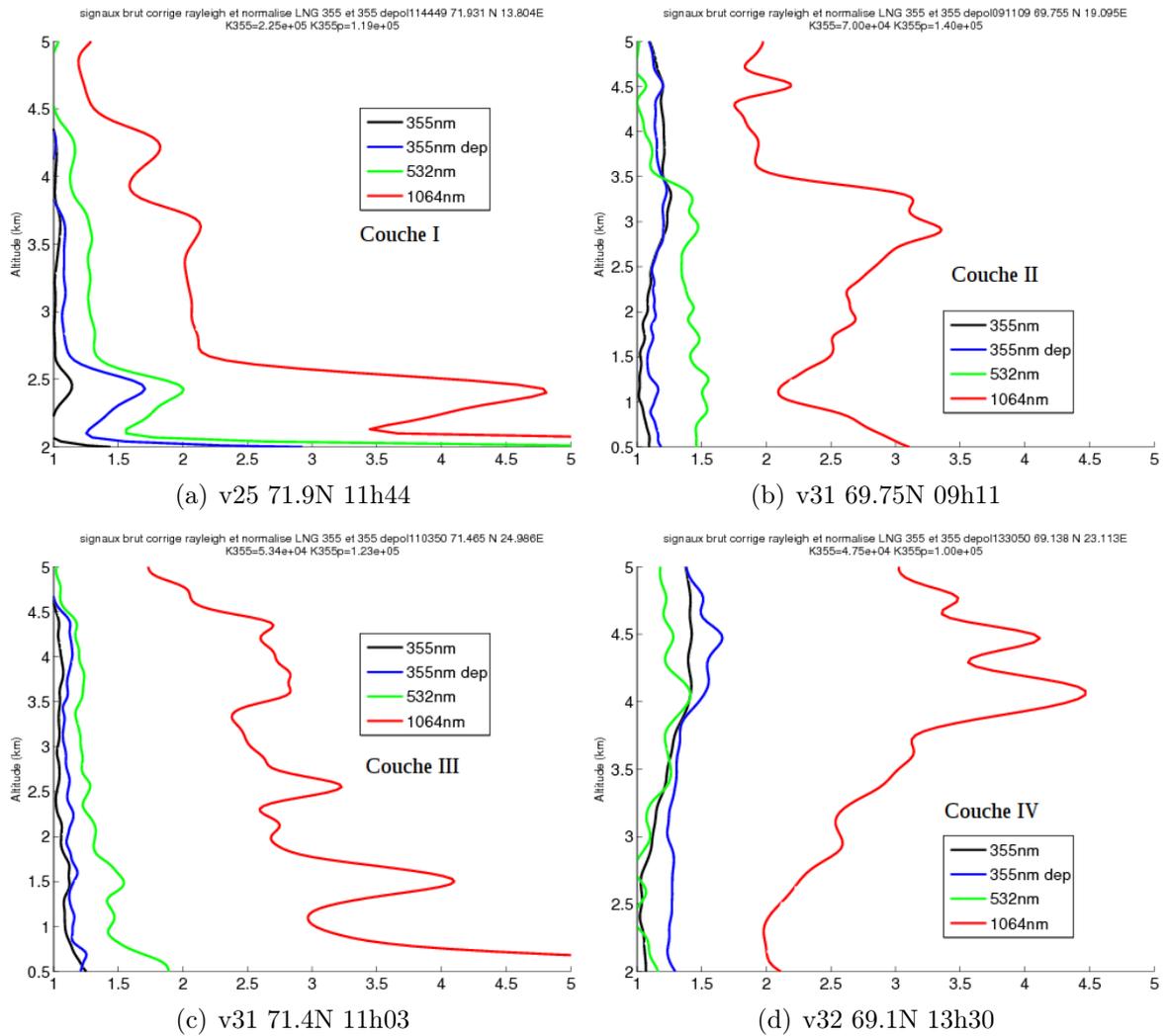


FIGURE 4.3 – Profils verticaux lidar moyens sur 20 secondes, des rapports de diffusion, $R(z)$, à 355, 355 dépolarisé, 532 et 1064 nm pour les quatre profils I, II, III et IV.

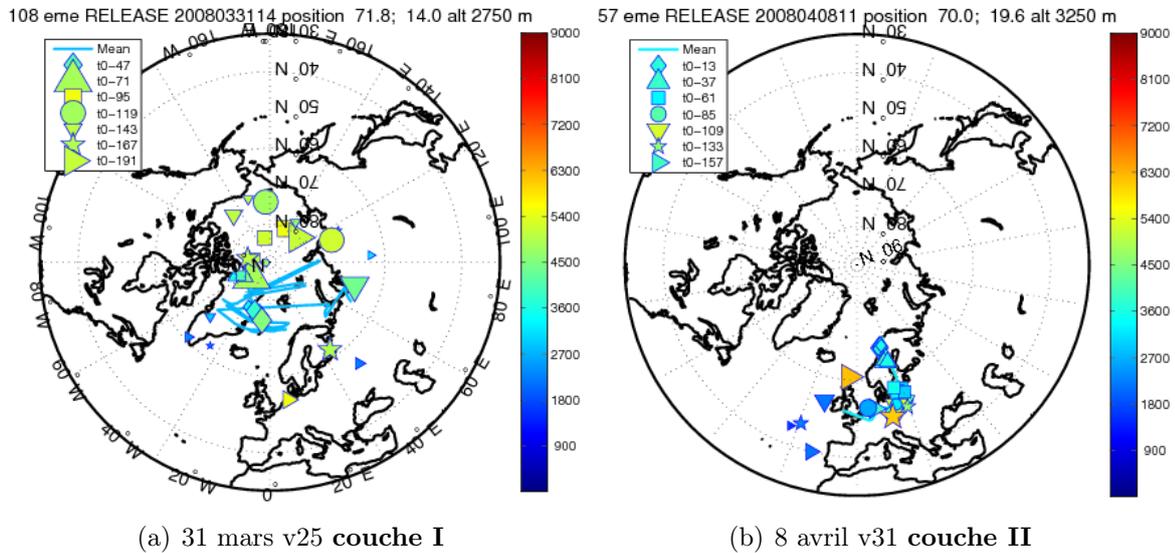


FIGURE 4.4 – Rétrotrajectoires à partir des simulations FLEXPART initialisées le 31 mars 2008 à 14UT à 71.8° N 14° E entre 2500-3000m (Fig. 4.4(a)) et le 8 avril 2008 à 11UT à 70° N 19.6° E 3000-3500m (Fig.4.4(b)).

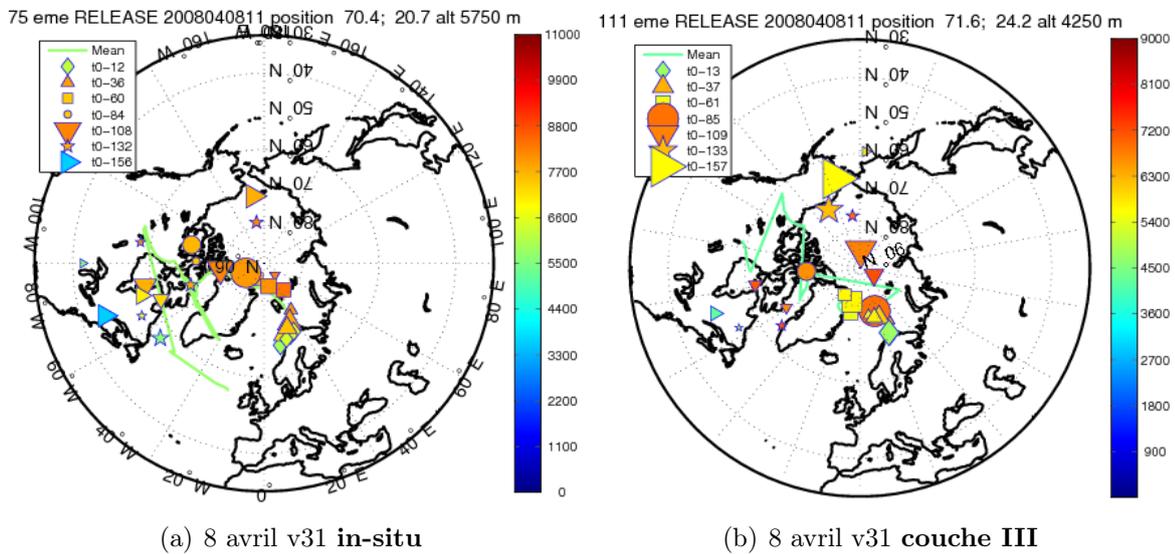


FIGURE 4.5 – Rétrotrajectoires à partir des simulations FLEXPART initialisées le 8 avril 2008 à 11UT à 70.4° N 20.7° E entre 5500-6000m (Fig. 4.5(a)) et à 71.6° N 24.2° E entre 4000-4500m (Fig. 4.5(b)).

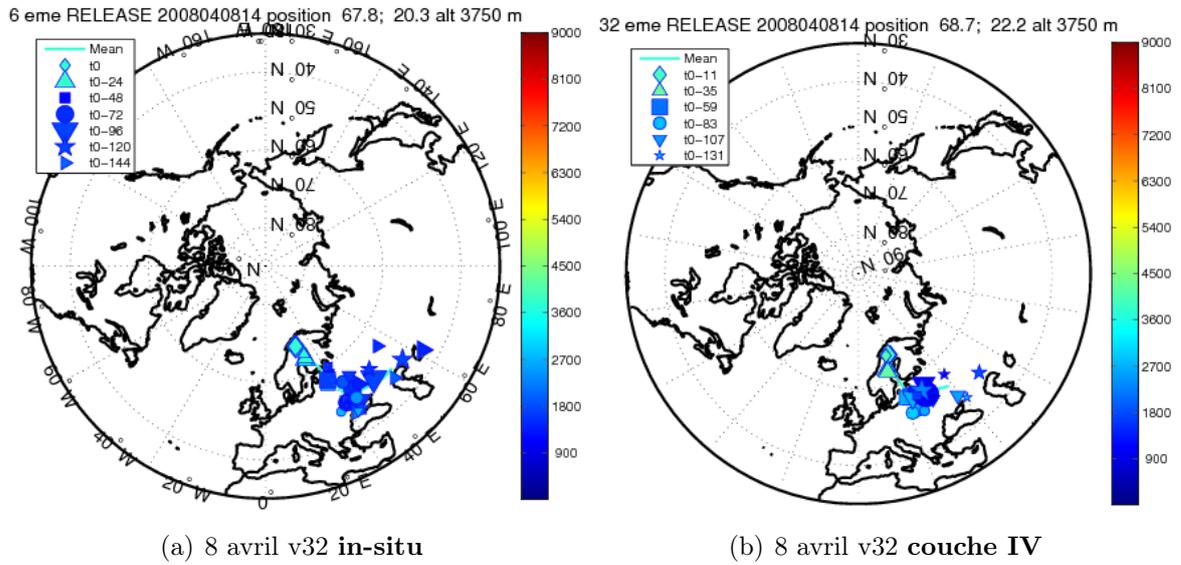


FIGURE 4.6 – Rétrotrajectoires à partir des simulations FLEXPART initialisées le 8 avril 2008 à 14UT à 67.8°N 20.3°E entre 3500-4000m (Fig. 4.6(a)) et à 68.7°N 22.2°E entre 3500-4000m (Fig. 4.6(b)).

entre 0 et 1 km, correspond à la couche limite (Fig.4.2(c)). On remarque aussi, une couche bien définie dans la troposphère libre, entre 70°N et 72.5°N , ayant une épaisseur inférieure à 1 km et qui présente également une légère inclinaison verticale correspondant probablement à l'inclinaison des surfaces isentropes. On distingue un autre panache d'aérosol aux latitudes inférieures à 69.2°N , entre 3.5 et 5.5 km d'altitude, avec un plus faible signal en rétrodiffusion à 1064 nm. Pour caractériser ces deux couches, quatre profils moyens sur 20 secondes ont été analysés : le premier correspond à l'épaisse couche à 68.9°N (qu'on nommera dans la suite, couche V), le deuxième et le troisième correspond à la plus longue fine couche s'étendant entre 69.6°N et 71.7°N (couche VI-A et VI-B)) et enfin, le dernier à 70.6°N , situé dans la couche limite marine au dessus de l'océan Arctique.

Les profils de $R(z)$, pour les 4 zones sélectionnées, sont montrés sur la figure 4.7. Pour la couche présentant le plus grand signal à 69.6°N (couche VI-A), R augmente aux trois longueurs d'onde. La valeur maximale à 532 nm est de l'ordre de 2, ce qui correspond, à une épaisseur optique $\tau_a \sim 4\%$. Pour la couche V, le rapport de diffusion à 532 nm, est plus faible (1.4) et $\tau_a \sim 3\%$. Les origines de ces couches sont différentes. Les rétrotrajectoires calculées par le modèle FLEXPART, montrent que la couche V provient d'Europe alors, que les couches VI-A et VI-B proviennent d'Asie (Fig.4.8).

Au total, nous disposons de 5 profils (un sur le vol 31, un sur le vol 32 et 3 pour le vol 35) qui permettent une analyse combinée entre des mesures lidar et les propriétés des aérosols mesurées in-situ.

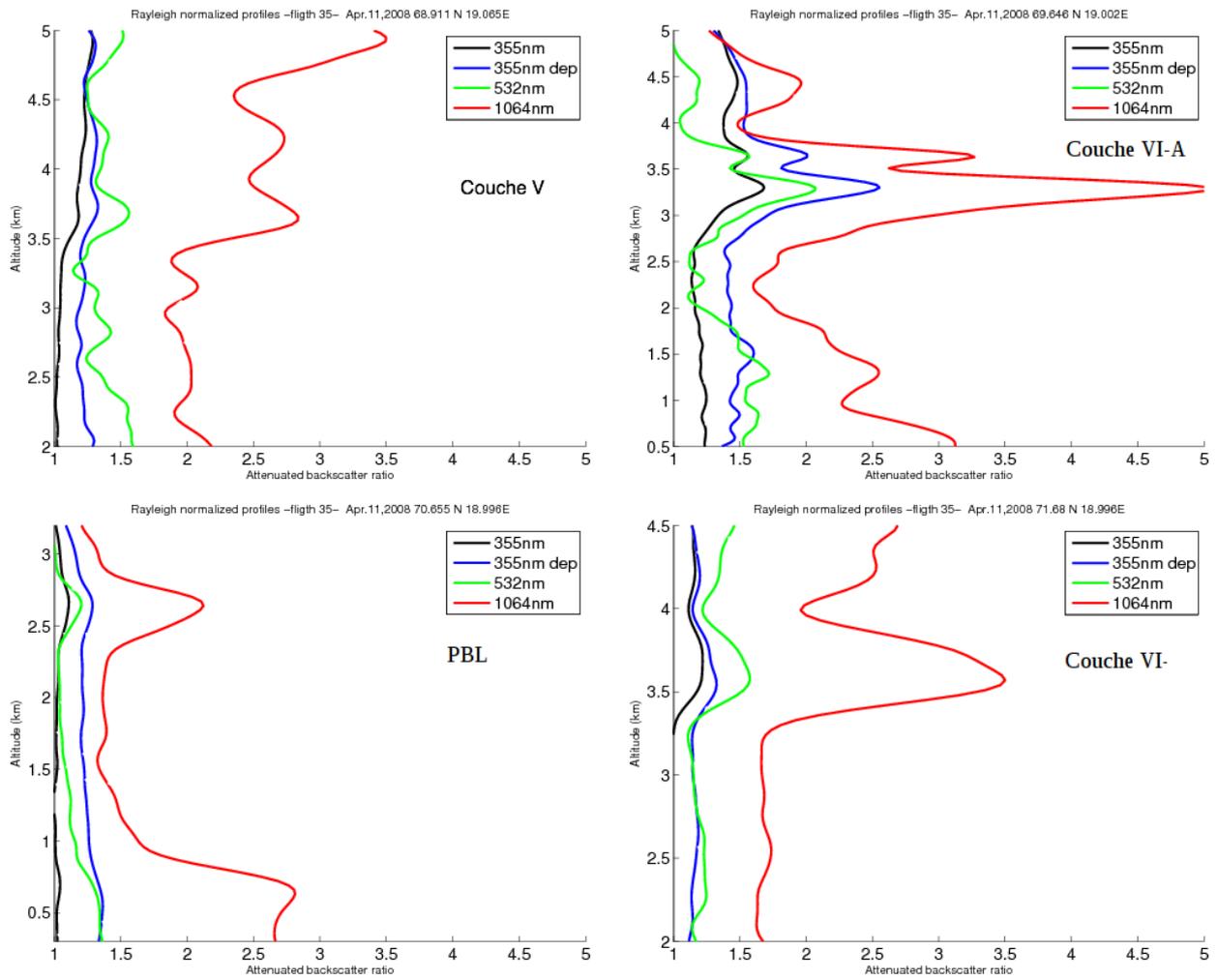
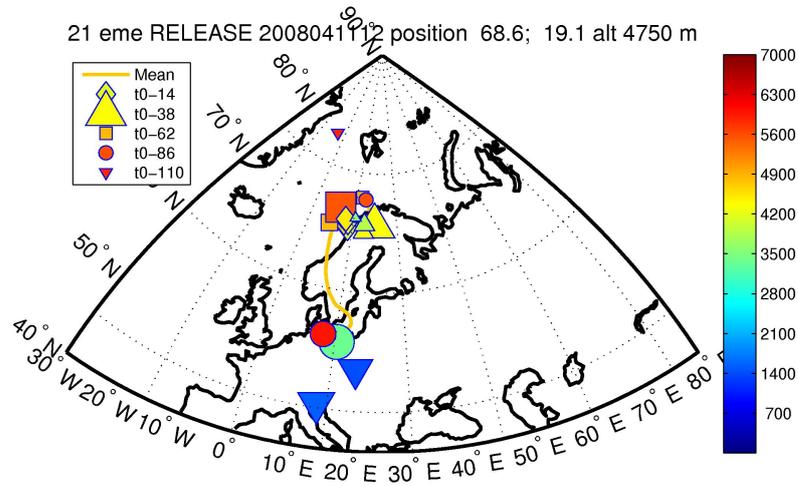
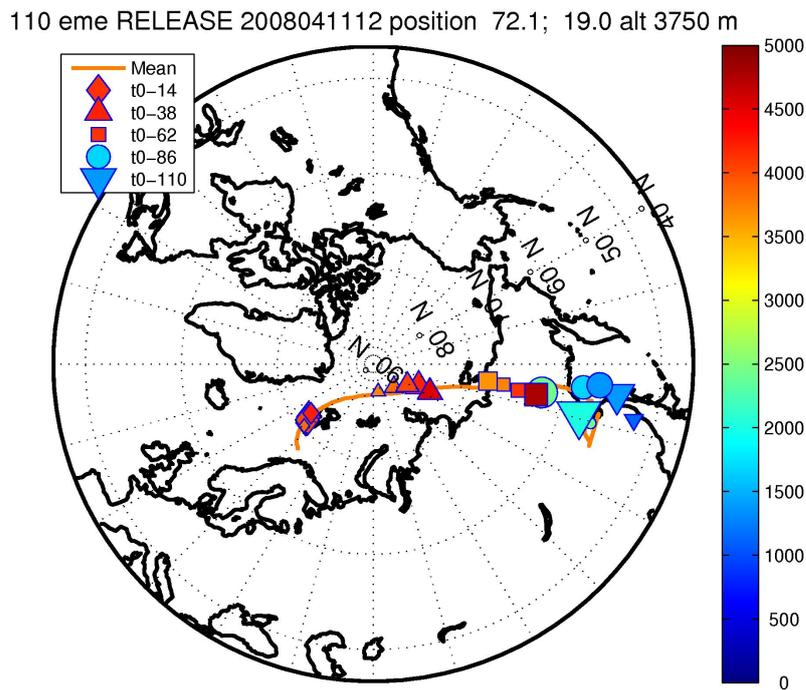


FIGURE 4.7 – Profils verticaux lidar moyens sur 20 secondes, des rapports de diffusion, $R(z)$, à 355, 355 dépolarisé, 532 et 1064 nm pour les quatre profils V, VI-A, PBL et VI-B.



(a) 11 avril v35 couche V



(b) 11 avril v35 couches VI

FIGURE 4.8 – Rétrotrajectoires à partir des simulations FLEXPART initialisées le 11 avril 2008 à 12UT à 68.6° N 219.1° E entre 4500-5000m (Fig. 4.8(a)) et à 72.1° N 19° E entre 3500-4000m (Fig. 4.8(b)).

4.2.2 Comparaison de CR*, δ_{355} et des spectres de taille.

Les rapports de pseudo dépolarisation, δ_{355} , sont représentés sur la figure 4.9(a) pour le profil du 31 mars, les 3 profils des vols du 8 avril et sur la figure 4.9(c) pour les 4 profils du 11 avril. Seuls, les profils à 71.9°N (couche I) du 31 mars, à 69.1 °N (couche IV) le 8 avril et à 69.6°N (couches VI) le 11 avril, présentent de la dépolarisation supérieure au moléculaire, avec des valeurs respectivement de l'ordre de 0.023, 0.018 et 0.023, ceci, n'est pas beaucoup plus élevé que la dépolarisation mesurée dans la couche limite arctique (0.019). Pour les couches I, IV et VI-A, le rapport de dépolarisation aérosol, δ_{355a} , correspondant à un δ de 0.023, 0.018 et 0.023 est de l'ordre de 4 à 5%, i.e. une valeur inférieure au rapport de dépolarisation aérosol à 532nm trouvé par Gobie et al. (2003) pour des aérosols sahariens sur un site montagneux en Italie. Nous avons vu dans le chapitre 2 que la variation en longueur d'onde de δ_a reste faible et le facteur 2 entre nos valeurs maximum de dépolarisation aérosol (5%) et celles de Gobie (3%) implique une fraction plus importante d'aérosol sphérique dans nos masses d'air probablement âgées.

Les profils de pseudo color ratio, CR*, montrent de plus grandes valeurs (0.20 ± 0.02) pour la couche IV à 69.1°N. Les couches I, II, III et VI-A possèdent des valeurs intermédiaires avec des CR* autour de 0.14 (Fig.4.9(b) et 4.9(d)). Les plus petites valeurs sont trouvées au sud du vol 35, dans la couche V (0.11 ± 0.02). Les caractéristiques principales, ainsi que les incertitudes associées aux couches d'aérosols, identifiées sur la figure 4.7 et 4.3, sont listées dans le tableau 4.1.

Le color ratio aérosol, qui est proportionnel à $\frac{R_{1064}-1}{R_{532}-1}$, est aussi répertorié dans le tableau 4.1. Cette quantité est directement liée à la dépendance spectrale du coefficient de rétrodiffusion aérosol, β_a . La différence entre les deux color ratio a été expliqué dans le chapitre 2.

Les concentrations en CO et en aérosol, mesurées par le PCASP intégré sur toutes les classes de taille, et le CPC3010, sont représentées sur la figure 4.10, pour la seconde partie du vol 31, le vol 32 (8 avril), et le vol 35 (11 avril). Pour la partie du vol 32, les mesures en CO ne sont pas disponibles. Les barres mauves délimitent les zones où sont observées les couches.

Les deux couches d'aérosols, explorées le 8 avril se distinguent par des concentrations en particules différentes. En effet, le deuxième panache de ce vol (couche IV), contient une plus grande concentration en particules ($1000 \text{ part.cm}^{-3}$), avec des particules de plus grosses tailles, comme le montre l'écart entre le CPC et le PCASP (700 part.cm^{-3}) qui est plus réduit à 68.3°N qu'à 70.6°N; c'est-à-dire pour la couche III provenant du flux Arctique (Fig.4.10(a) et 4.10(b)). Cette dernière, possède un signal PCASP intégré plus faible ($<100 \text{ part.cm}^{-3}$) et les particules sont essentiellement détectées par le CPC. Ceci, est cohérent avec un plus grand pseudo color ratio observé par le lidar dans la couche IV. Notons, une faible augmentation en CO (de l'ordre de 20 ppb) lorsque l'avion explore la couche III, ce qui est cohérent avec les plus faibles concentrations en particules observées pour cette couche.

Les figures 4.10(c) et 4.10(d) montrent les concentrations pour des latitudes inférieures et supérieures à 70°N. Le second graphe porte sur la traversée de la couche VI par l'avion. La variabilité du CO est bien corrélée avec la concentration des aérosols avec une variation de l'ordre de 100ppb pour les deux panaches. Cette variabilité peut être expliquée par la

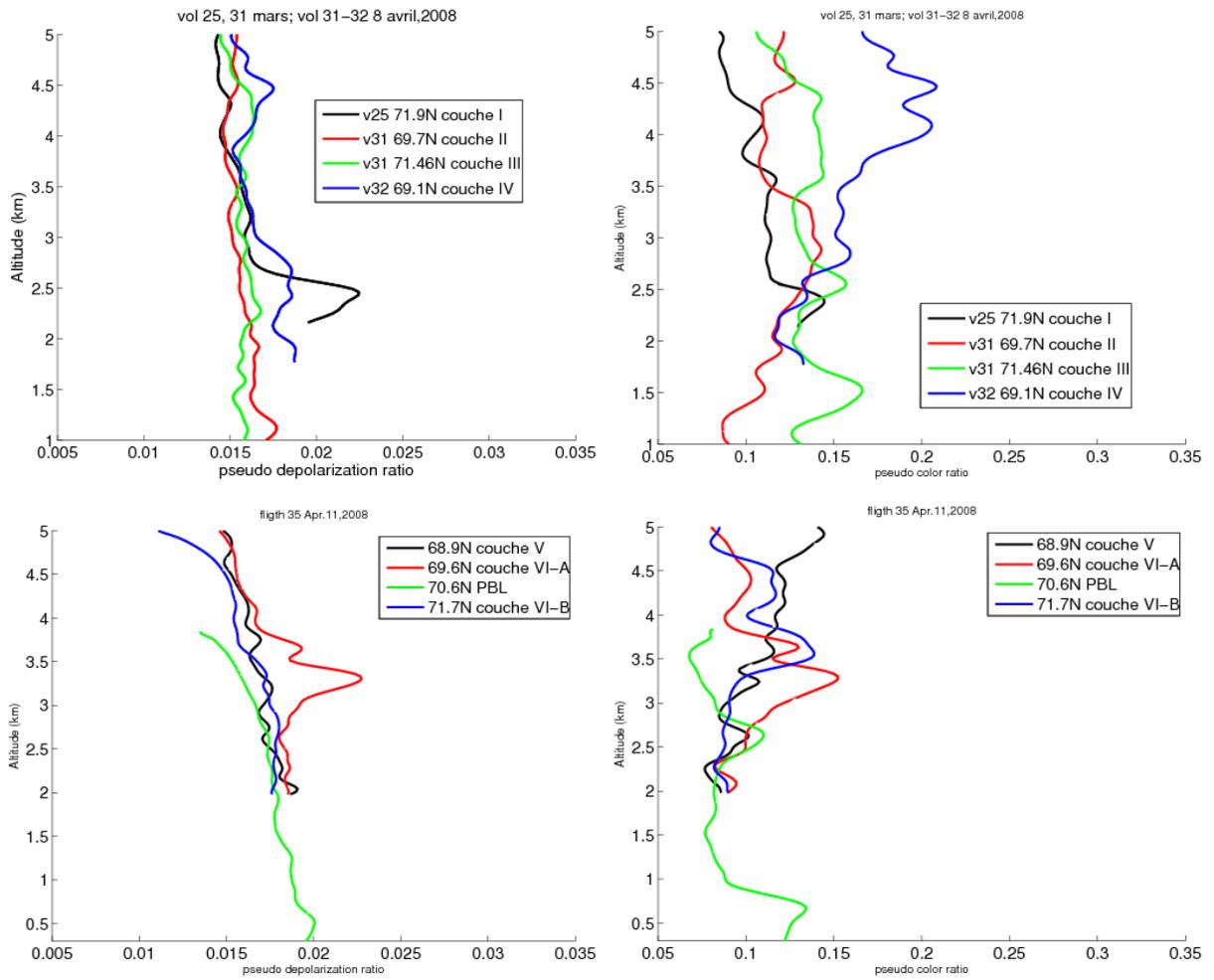


FIGURE 4.9 – Profils verticaux de pseudo dépolarisation à 355 nm, δ_{355} , et de pseudo color ratio, CR^* , entre 1064 et 532 nm pour les couches I à IV en haut et les couches V, PBL et VI, en bas.

grande stratification en aérosols et composés chimiques de la troposphère libre, comme on peut le voir sur la coupe verticale du lidar. Les plus faibles valeurs de CO sont de l'ordre de 130 ppb et correspondent aux masses d'air les plus "propres" et âgées. En comparant les données du PCASP et celles du compteur optique, on note de plus grandes concentrations de petite particules dans la partie sud du vol. Ceci est cohérent avec les différences de pseudo color ratio du lidar qui est supérieur au nord.

Une autre manière de voir la plus grande importance des petites particules est de tracer le spectre de taille des particules rencontrées le long du vol par le SMPS pour les particules inférieures à 300 nm et par le PCASP pour les plus grosses particules (Fig.4.11). Même si le temps d'intégration du SMPS est moins bien adaptée aux couches fines, la méthode est plus directe.

Pour le 8 avril, on distingue que le deuxième vol possède des concentrations en particules et des tailles, plus grandes que pour les autres couches (Fig4.11(b)). En effet, les tailles sont comprises entre 50 et 400 nm pour la couche IV, et entre 50 et 300nm pour la couche III.

Pour le vol du 11 avril, on distingue que la section la plus au sud du vol, est caractérisée par des petites particules, dont la taille est comprise entre 30 et 200 nm alors que les particules transportées par le flux Arctique sont plus grosses avec des tailles variant entre 100 et 300nm. Ces résultats sont cohérents avec l'analyse comparée entre le PCASP et le compteur optique. Notons que la fraction de particule ayant un diamètre supérieur à 300 nm augmente dans les couche IV à 68.3°N et VI-A à 69.6°N, i.e. où les valeurs de pseudo color ratio et de pseudo dépolarisation sont les plus élevées dans les données lidar .

Ceci est relié soit au lessivage des grosses particules durant le transport provenant des moyennes latitudes où à la génération de nouvelles petites particules. Les deux hypothèses impliquent des différences pour les couches III et IV ainsi que pour les couches V et VI, dans l'âge de la masse d'air depuis l'exposition à une source d'émission d'aérosols ou sur la nature de l'émission (e.g. plus grande concentration de SO₂, Weber et al. (2003) ou bien liée aux plus grandes émissions continentales de composés organiques au dessus de l'Europe du nord, Sallegri et al. 2005).

Les analyses des mesures in-situ associées aux analyses lidar permettent de mettre en avant les résultats suivants :

- Parmi les six couches d'aérosols étudiées dans ce chapitre, quatre (III, IV, V et VI) peuvent être reliées à des mesures in-situ des propriétés de l'aérosol.
- des faibles valeurs de color et de pseudo color ratio comparées à celles issues des données AERONET. Ceci, est dû à des épaisseurs optiques plus faible (<0.04) et à des plus grands coefficients d'Angström dans notre cas.
- En considérant la bonne corrélation entre les concentrations de CO et d'aérosols (notamment pour le 11 avril), les couches d'aérosols observées par le lidar sont probablement reliées à des panaches de feux de biomasse ou à des émissions urbaines/industrielles. Ceci, a déjà été rapporté par Kampe et Sokolik (2007) et Capes et al. (2008).
- la couche IV, originaire d'Europe orientale, possède le plus grand pseudo color ratio ainsi qu'un peu de dépolarisation, ce qui est en accord avec des particules de plus grande taille mesurées par le SMPS et le PCASP (fractions de particules > à 300 nm).

4.2. Variabilité des propriétés optiques associée aux données in-situ.

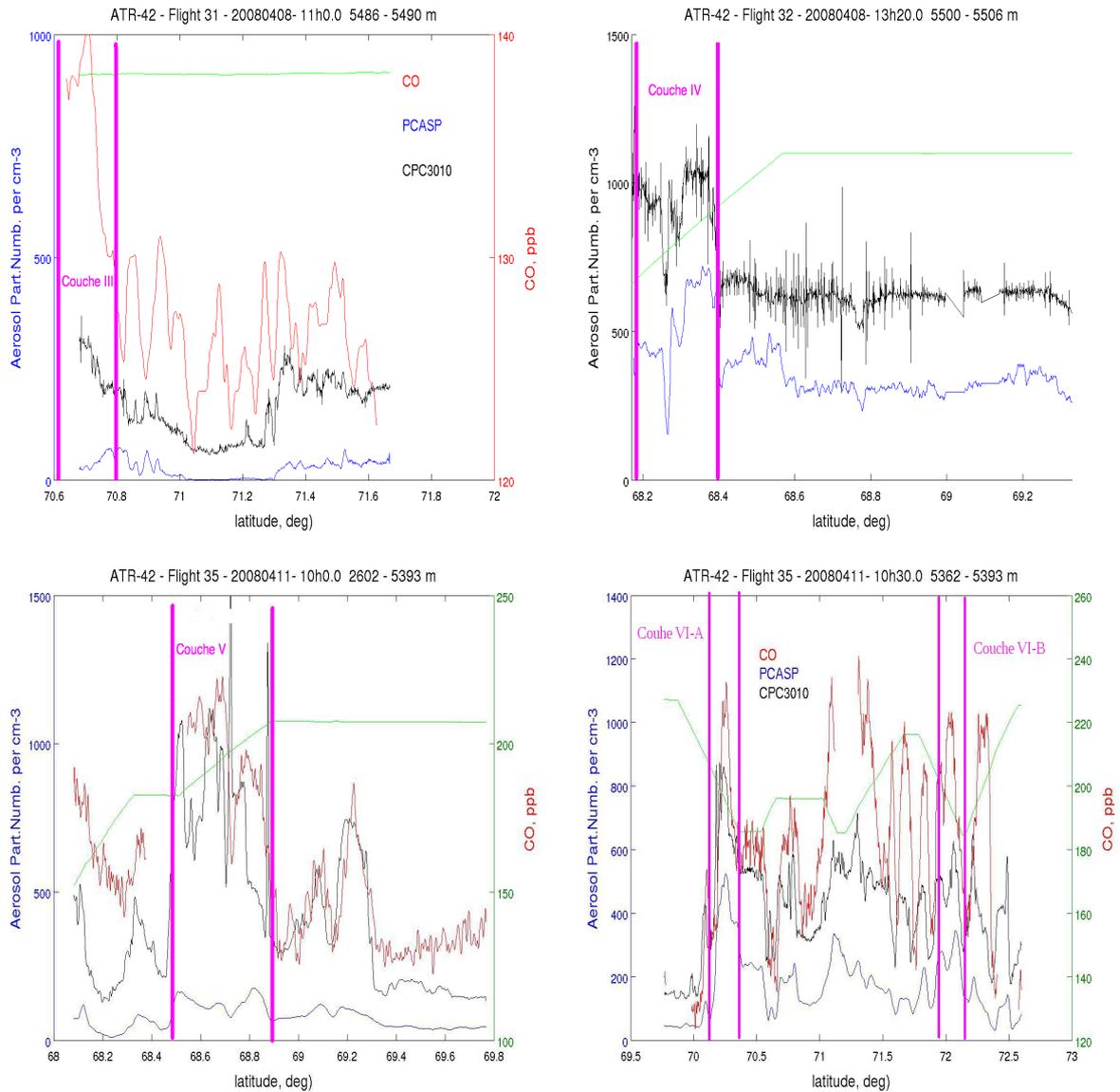


FIGURE 4.10 – Concentration de CO (en rouge) et en aérosol mesurée par le PCASP (en bleu) et le CPC3010 (en noir), le long de la trajectoire de l’avion pour les vol 31 et 32 du 8 avril (Fig.4.10(a) et Fig.4.10(b)) ainsi que pour le vol 35 du 11 avril (Fig.4.10(c) et Fig.4.10(d)). L’altitude de l’avion, divisée par un facteur 5 (en vert), est tracée en m en utilisant l’axe vertical de gauche.

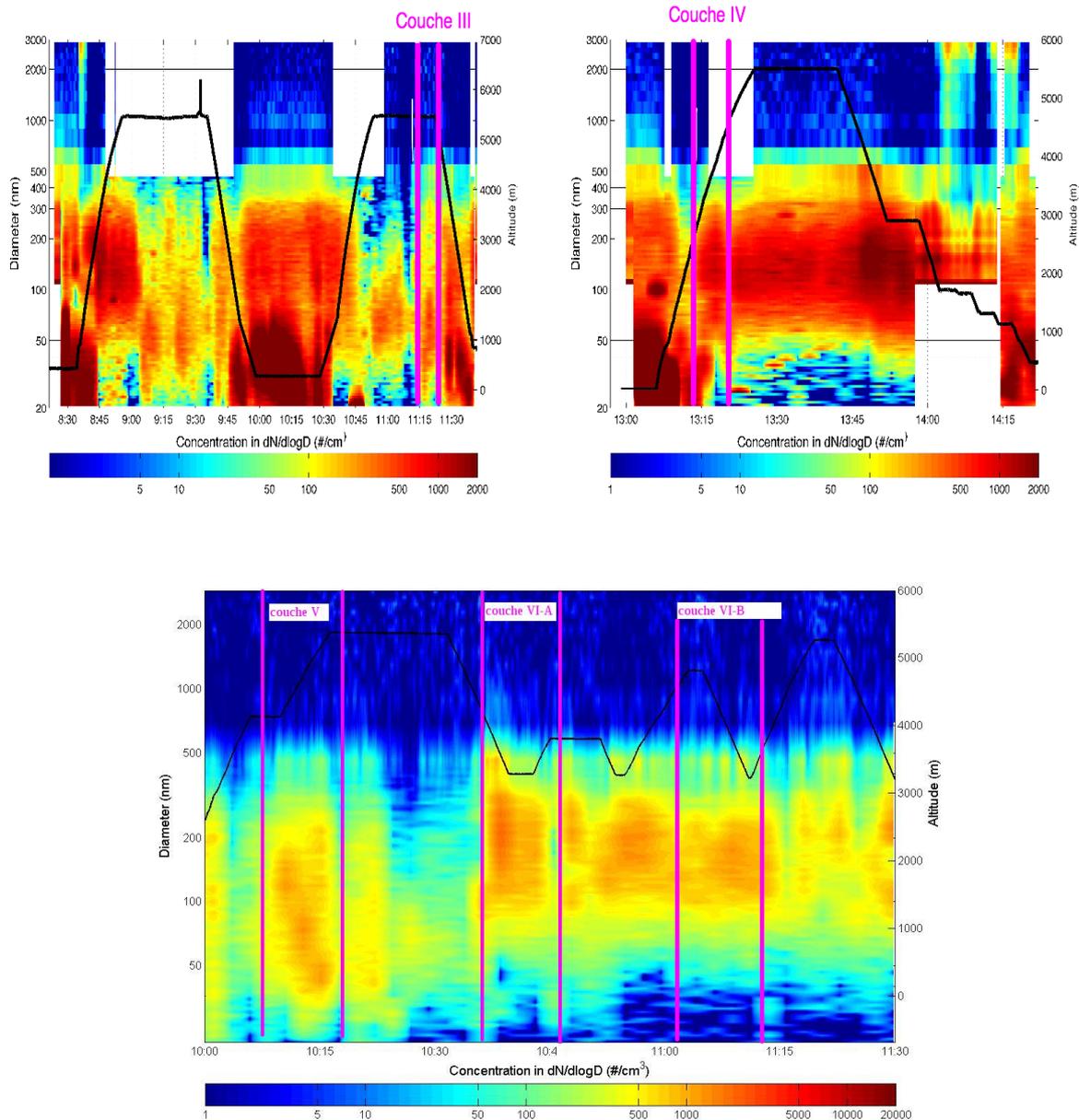


FIGURE 4.11 – Spectre de taille ds particules (nm) mesuré par le SMPS (0.01 et 0.4 μm) et le PCASP (0.4-3 μm) le long de la trajectoire de l'avion (représentée en noir sur les graphes) pour les vols 31 et 32 (Fig.4.11(c) et 4.11(b)) et le vol 35 (Fig. 4.11(c)).

- la couche V d'origine européenne, possède la plus basse dépolarisation ainsi que le plus bas pseudo color ratio, ce qui est en accord avec des fractions de particules secondaires de très petites tailles (<200 nm).
- la couches VI d'origine asiatique possède des particules de plus grande taille que dans la couche V, comme l'indique les plus grandes valeurs de pseudo color ratio. Elle est hétérogène, avec la couche VI-A qui présente de la dépolarisation contrairement à la couche VI-B.

Pour comprendre l'influence des différents types de transport des masses d'air et la nature des sources, nous allons maintenant mener une analyse lagrangienne, en combinant les simulations FLEXPART et les mesures CALIOP, pour trois types de couches d'aérosol discutées précédemment :

- la partie du vol du 31 mars est sous l'influence du transport provenant d'Arctique.
- la partie sud du vol du 8 avril est influencée par du transport provenant d'Europe orientale alors que la partie nord est sujette au transport de masses d'air de Sibérie.
- la partie Sud du vol du 11 avril est influencée par du transport européen alors que la partie plus au nord est sujette au transport de masses d'air asiatiques.

4.3 Propriétés optiques des couches d'aérosols par CALIOP.

La table 4.1 résume les propriétés optiques ainsi que l'origine des masses d'air étudiées dans la partie précédente. Les pseudo color ratio varient de 10 à 20% et les dépolarisation entre 1.6% et 2.4%. Même si ces variations sont modestes, elles restent supérieures aux incertitudes : 2% et 0.3% respectivement pour ces deux paramètres. On étudiera ici, l'évolution des propriétés optiques à partir des données CALIOP le long des rétrotrajectoires calculées pour chacune des couches et la localisation des sources responsables de la présence de ces panaches d'aérosols en Arctique. On séparera dans cette partie, les contributions asiatiques, européennes et arctiques.

TABLE 4.1 – Caractéristiques des couches d'aérosols observées le 31 mars, le 8 et 11 avril 2008 par le lidar LNG. Les couches référencées par une étoile correspondent à des couches possédant des mesures in-situe.

Lidar layer	Layer latitude	Altitude range, km	Origine	Aerosol color ratio	Pseudo color ratio	Aerosol δ_{355}	Pseudo δ_{355}
I	71.9°N	2–2.5	Sibérie	0.28±0.04	14.3±1.31 10 ⁻²	5±4%	2.35±0.33%
II	69.7°N	2.5–3.2	Europe	0.25±0.08	14±1.56 10 ⁻²	2.25±2%	1.7±0.3%
III*	71.4°N	3.5–4.2	Arctique Asie+US	0.53±0.33	14.5±2.1 10 ⁻²	3±4%	1.7±0.2%
IV*	69.1°N	3.5–4.5	Europe Oriental	0.52±0.21	20.5±2.4 10 ⁻²	4±3%	1.8±0.3%
V*	68.9°N	3.5–4.5	Europe	0.33±0.15	11±1.5 10 ⁻²	2.25±1.8%	1.6±0.3%
VI-A*	69.6°N	2.8–3.8	Asie	0.25±0.06	15.2±1.4 10 ⁻²	5±2.1%	2.3±0.3%
PBL	70.6°N	<0.8	Arctique	0.31±0.10	13.5±1.6 10 ⁻²	4.8±4.5%	1.9±0.3%
VI-B*	71.7°N	3.5–4.5	Asie	0.26±0.10	13.7±1.6 10 ⁻²	1.8±0.8%	1.6±0.2%

4.3.1 Méthodologie

Pour chaque couche d'aérosol observée, nous avons sélectionné une zone sur les coupes verticales de fractions de particules calculées par le modèle FLEXPART qui correspond à la couverture spatiale du panache. Dans ces zones, nous avons utilisé les rétrotrajectoires initialisées dans des boîtes de $0.5^\circ \times 0.5^\circ \times 500\text{m}$ et cherché les coïncidences avec les orbites CALIPSO sur six jours. Une orbite CALIPSO a été sélectionnée si son échéance temporelle et sa position horizontale ne dépasse pas 2h et 200km comparée à celle d'un des 5 clusters de particules calculés par FLEXPART à chaque pas de temps. Ensuite, nous avons utilisé les données de la version 2.01 des produits opérationnels CALIOP aérosols le long des traces CALIPSO sélectionnées. Ces produits nous fournissent les propriétés optiques des couches d'aérosols moyennées tous les 5 km horizontalement [Liu et al.(2009)]. Nous avons considéré, les couches d'aérosols lorsque l'altitude de celles-ci, est à plus ou moins 1km d'altitude par rapport à celle, calculée par la simulation FLEXPART et sur une portion de trace de +/- 300 km, c'est-à-dire une distance maximum de 500 km par rapport au point sélectionné sur la trajectoire FLEXPART. Nous avons rajouté deux conditions supplémentaires : on considère les couches détectées uniquement à une résolution horizontale de 80 km et ayant une épaisseur optique à 532 nm supérieure à 3%. Ces deux conditions sont nécessaires pour pouvoir considérer des couches d'aérosols ayant des faibles épaisseurs optiques comme on a pu le voir lors des observations lidar aéroportées.

Notons que pour les faibles épaisseurs optiques observées en Arctique, les incertitudes liées au pseudo color ratio et à la dépolarisation des produits opérationnels de niveaux 2 du lidar CALIOP, sont souvent très grandes (50 à 100% voir plus de 200% pour la dépolarisation) et ne permettent pas une analyse quantitative sur la composition de l'aérosol et son évolution. Néanmoins, les plus grands rapports (i.e. moyenne+écart type) contiennent une indication significative sur la source potentielle et sur l'évolution des propriétés optiques (voir Omar et al. (2009)) pour une classification des aérosols par l'interprétation des pseudo color ratio et des rapports de dépolarisation). Le niveau de discrimination entre les aérosols et les nuages (Cloud Aerosol Discrimination (CAD)) a été calculé pour toutes les couches listées et sont toujours supérieurs à 50% et les 3/4 des couches d'aérosol discutées dans cette partie possède un CAD supérieur à 75%, ce qui est une bonne indication sur le fait que la couche détectée par CALIOP soit de l'aérosol [Eguchi et al.(2009)].

4.3.2 Etude des couches I et III et VI associées aux régimes de transport de secteur Nord .

Identification des sources

Les masses d'air associées aux couches I et III observées pendant les vols 25 et 31, ont connu un transport plus lent que les masses d'air associées à la couches VI. En effet, elles sont restées confinées dans les régions arctiques comme le montre les rétrotrajectoires 6 jours avant les observations (Fig.4.4). Les masses d'air, pour une partie, se situent au nord de la Sibérie et pour une autre partie, au dessus du détroit de Bering. Les couches VI-A et VI-B, au nord du vol 35, sont transportées des régions asiatiques via une ascension liée à la présence d'une zone frontale dans la partie nord-est de la Chine entre le 5 et le 7

avril (montré par la carte de θ_e et de champs de vent de la figure qui montre la position à 700 hPa du centre dépressionnaire et l'advection de masses d'air chaudes et humides vers l'Arctique, (Fig. 4.12)).

Pour être plus spécifique, sur les zones géographiques des sources responsables de l'augmentation des aérosols et du CO, nous avons aussi utilisé une carte montrant la sensibilité potentielle d'émission (SPE), décrit par Seibert et Frank (2004) et calculée pour différentes positions le long de la trajectoire de l'avion pour chaque vol (mis en ligne par John Burkhardt <http://transport.nilu.no/flexpart-projects>). La carte SPE est montrée sur la figure 4.13 pour une position de l'avion lors des vols 25 (31 mars), 31 (8 avril) et 35 (11 avril) située respectivement à 72.2°N, 71.8°N, 72°N et 72.4°N, ce qui est représentatif de l'histoire des couches I, III, VI-A et VI-B.

On peut voir que la couche VI asiatique, ne peut pas être considérée comme une seule couche avec la même histoire, mais plutôt influencée par deux sources distinctes : des émissions liées aux incendies ayant eu lieu en avril 2008 en Sibérie, à l'est du lac Baïkal, (cf : carte MODIS montrant une moyenne sur 10 jours des incendies ayant eu lieu entre le 31/03/2008 et le 09/04/2008 Fig.4.14) et les émissions anthropiques du nord-est de la Chine (Streets and Waldhoff, 2000). L'impact important des feux sibériens, ayant eu lieu au printemps 2008, sur la composition de l'atmosphère arctique a déjà été observé au dessus de l'Alaska (Warneke et al. 2009) et par des observations satellite (Coheur et al., 2009). L'identification entre une source donnée et une partie de la couche VI, vu par le lidar, ne peut pas résulter de la seule analyse trajectographique compte tenu de ces incertitudes mais nous pouvons attendre une hétérogénéité des propriétés optiques dans ce panache.

L'analyse des cartes SPE pour les couches I et III montre que ces couches ont stagné sur une période supérieure à 10 jours en Arctique et ont à la fois une origine à la fois nord américaine (émissions anthropiques) et nord asiatique (feux de sibérie). Comparativement à la couche VI, ces masses d'air sont plus âgées en terme de contact avec les zones d'émissions. Nous pouvons donc nous attendre à ce qu'elles présentent des propriétés optiques différentes à la couche VI et possèdent des caractéristiques associées à la fois aux émissions nord-américaines et asiatiques.

En utilisant les trajectoires des masses d'air montrées sur les figures 4.4(a), 4.5(b) et 4.8(b), on peut voir les coïncidences entre les orbites CALIPSO et les couches d'aérosols observées par les mesures aéroportées. Cela a été fait pour les 4 groupes correspondant au rectangle noir sur les coupes verticales de fractions de particules (Fig.4.15(a), pour les couches VI-A et VI-B; Fig.4.17(a) et 4.18(a), pour les couches I et III).

Les sections d'orbites, ainsi que les positions des masses d'air calculées par FLEXPART correspondantes, sont montrées sur les figures 4.15(b), 4.16(a), 4.17(b) et 4.18(b) pour respectivement les couches VI-A, VI-B, I et III. L'échelle de couleur correspond au temps entre l'échéance temporelle de la trace CALIPSO et les observations aéroportées. On a représenté en dessous de chacune de ces figures les mêmes correspondances mais en indiquant par une échelle de couleur les altitudes des clusters pris en considération, ce qui permet de reconstituer la trajectoire moyenne de la masse d'air ciblée (Fig 4.15(c), 4.16(b), 4.17(c) et 4.18(c)). Les observations CALIPSO sélectionnées pour les couches VI-A et VI-B proviennent de la même région mais ont connu des transports différents. En effet, pour la couche VI-B, les observations et les coïncidences CALIPSO au dessus

du continent s'effectuent 3 jours avant, avec un transport vers le nord autour de 135°E. La couche VI-A montre une voie de transport plus longue, avec un passage au dessus du Pacifique nord et même en partie, au dessus de l'Alaska avant de se diriger vers la Scandinavie. Les observations des couches I et III se situent uniquement en Arctique avec des portions d'orbites disponibles près des côtes nord-sibériennes et nord-américaines.

Propriétés optiques des panaches d'aérosols transportés.

Le coefficient moyen de rétrodiffusion atténué à 532 nm, le pseudo color ratio entre 1064 nm et 532 nm et le coefficient volumique de dépolarisation à 532 nm sont reportés pour chaque couche ayant été transportée par un régime de transport venant du nord. Le tableau 2 présente les résultats pour les couches VI-A et VI-B et les tableaux 3 et 4, pour les couches I et III.

Les couches détectées dans la région 65°N-85°N, 10°E-30°E colorées en vert dans les différentes tables doivent posséder des caractéristiques peu éloignées de celles des couches observées par le lidar aéroporté. Elles présentent en effet, des valeurs de rétrodiffusion à 532 nm assez modérées ($1.4-1.7 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$, i.e. correspondant à un rapport de diffusion entre 1.6 et 1.9), les plus faibles pseudo color ratio (≤ 0.25) et peu ou pas de dépolarisation ($\sim 3\%$). Mise à part la différence des valeurs absolues des rapports de couleur déjà discutée au chapitre précédent, les résultats sont cohérents avec les propriétés des couches mesurées par le lidar LNG (Tab.4.1). En effet, ces valeurs de dépolarisation mesurées à 355nm par l'avion ($\sim 2\%$) sont un petit peu plus faibles que le δ_{355} (2.5%) attendu pour un δ_{532} de 3%. Toutes les valeurs des coefficients de dépolarisation et de pseudo color ratio, mesurées par CALIOP dans cette zone, présentent des minimas relatifs qui permettent de s'assurer que les évolutions observées sur les données CALIOP correspondent effectivement à l'évolution des sources ayant conduit à l'observation de ces panaches d'aérosol par l'avion.

L'analyse de l'évolution des sources, pour les couches VI-A et VI-B, utilise uniquement les données CALIOP ayant un coefficient de rétrodiffusion $\geq 2 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ ($R \geq 2$) i.e. avec une intensité suffisante pour pouvoir discuter des propriétés optiques. La position des couches sera le premier critère retenu pour distinguer les trois sources asiatiques majeures : les poussières désertiques advectées à partir du désert de Gobi et Taklamakan dans la bande de latitude 40°-50°N ([Duce et al.(1980)]) ; dans la même bande de latitude et plus à l'est, les émissions industrielles de la région de Heilongjiang, et les émissions liées aux feux ayant lieu dans la région du lac Baikal (50°N-55°N). Quatre résultats principaux ressortent de cette analyse portant sur les couches VI-A et VI-B :

- Pour la zone 42° et 52 °N, plusieurs sources influencent les propriétés des aérosols (couches colorées en doré dans la table) : pas de valeurs élevées de pseudo color ratio (autour de 0.3) et un faible δ (0-7%) pour les longitudes $< 135^\circ\text{E}$ (texte en noir dans la table) et des plus forts pseudo color ratio (0.5-1) et une forte pseudo dépolarisation (10-14%) pour les longitudes $> 135^\circ\text{E}$ (i.e. près des côtes de l'océan Pacifique, texte en rouge dans la table)
- Près des sources de feux de Sibérie (55-60°N, 90-120°E), on observe des $\beta_{532} \leq 2 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ ($R \sim 1.5$) avec un pseudo color ratio de l'ordre de 0.3 et un faible δ_{532} (4-7%), i.e. avec probablement des aérosols de petites tailles qui n'ont pas le temps de grossir car ils peuvent atteindre l'Arctique sans être transportés à travers

4.3. Propriétés optiques des couches d'aérosols par CALIOP.

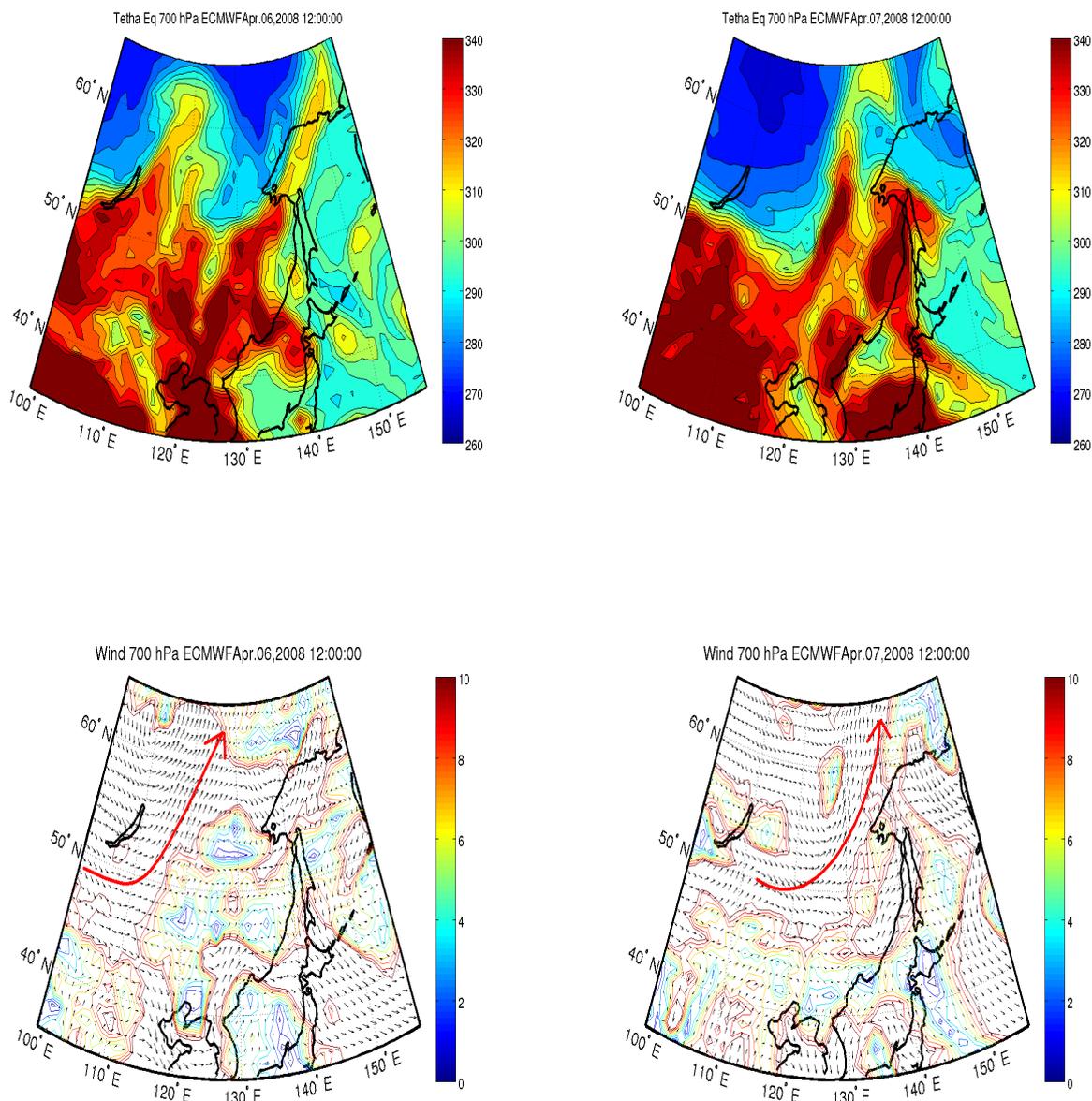


FIGURE 4.12 – Carte de température potentielle à 700 hPa en K (en haut) et champs de vent (en bas) à 700 hPa issue de l'CEPMMT pour le 06/04/2008 (colonne de gauche) et le 07/04/2008 (colonne de droite) à 12 :00TU. Les isotachs ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) sont représentées par les isolignes colorées.

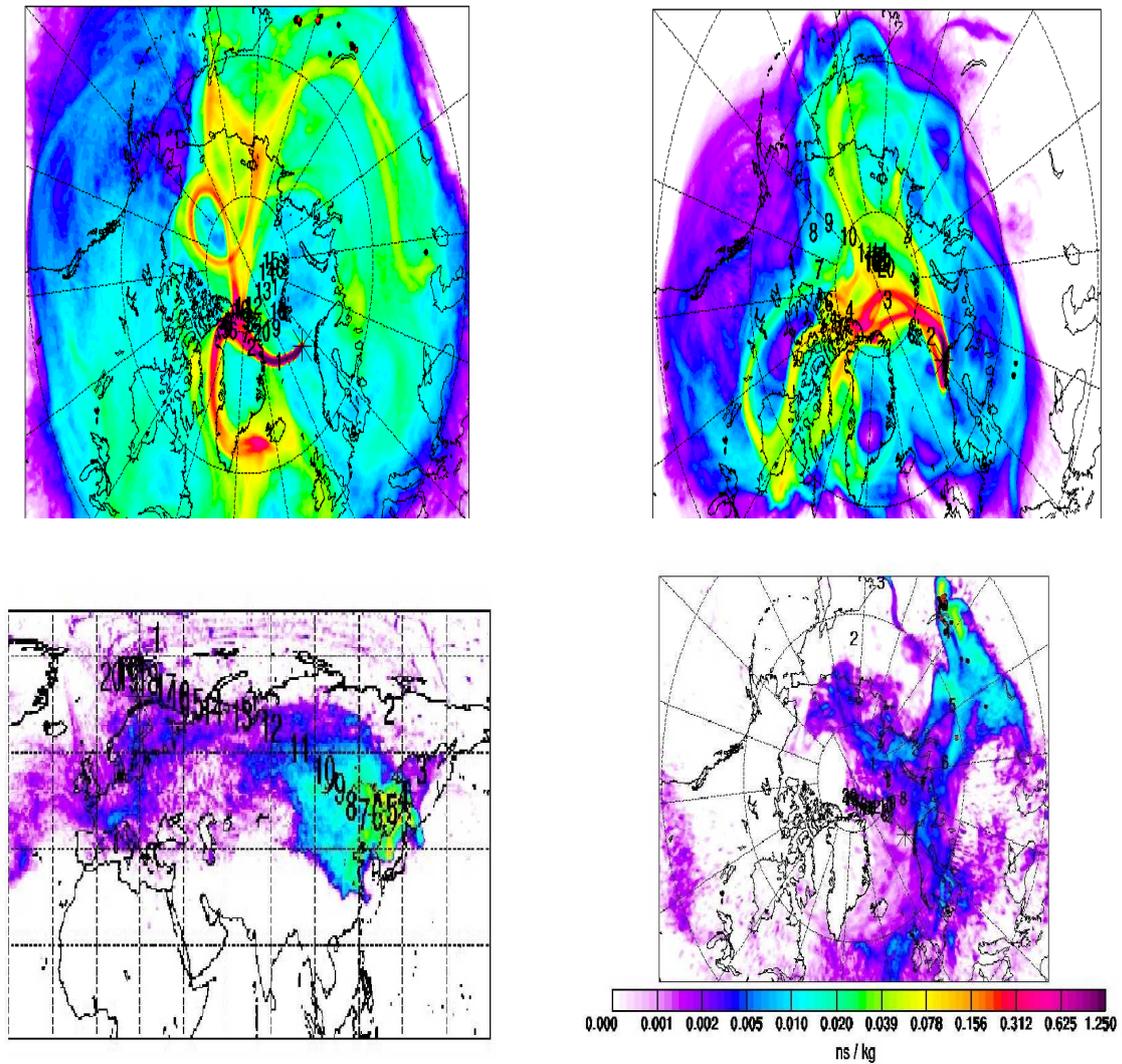


FIGURE 4.13 – Potential Emission Sensivity (PES) en ns/kg pour 4 points le long de la trajectoire de l'avion à 72.2° N-3500m (couche I, en haut à gauche) pour le vol 25 du 31 mars, 71.8° N-4200m (couche III, en haut à droite) pour le vol 31 du 8 avril, à 72° N-3600m (couche VI-A, en bas à gauche) et 72.4° N-5250m (couche VI-B, en bas à droite) pour le vol 35 du 11 avril. Les nombres indiquent le temps passé, en jour, depuis l'émission le long de la trajectoire moyenne. (voir http://transport.nilu.no/flexpart-projects?cmp=POLARCAT_FRANCE)

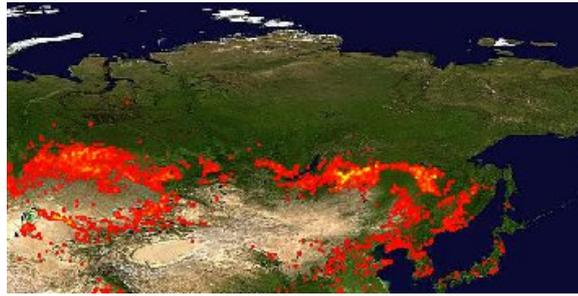


FIGURE 4.14 – Feux détectés par MODIS sur une période de 10 jours entre le 31/03/2008 et le 09/04/2008 pour la région asiatique. Les points varient du rouge au jaune, en fonction de l'augmentation du nombre de feux.

- des systèmes frontaux très humides. (Couches colorées en marron dans la table)
- aux latitudes $> 60^\circ\text{N}$ (i.e. dans les régions arctiques), on peut distinguer deux régions : (i) les couches détectées au dessus de l'Alaska (longitudes $\sim -175^\circ\text{E}$) avec un color ratio de 0.3-0.4 et un peu de dépolarisation (9-10%) bien qu'inférieures aux valeurs vues près des côtes du nord-est du Pacifique, (ii) les couches dans les régions arctiques de l'Eurasie (colorées en orange) avec un pseudo color ratio qui varie entre 0.3 et 0.5 et une dépolarisation plus faible (2-8%)
 - pendant le transport d'Asie vers la Scandinavie en passant par l'Arctique, on observe que le β_{532} décroît de 3 à $1.5 \cdot 10^{-3} \text{km}^{-1} \text{sr}^{-1}$ (i.e. R passant de 3 à 1.7) et on constate moins de masses d'air ayant un pseudo color ratio et un pseudo rapport de dépolarisation élevé. Notons aussi qu'il n'y a pas clairement de dépendance des propriétés optiques avec l'altitude, dans les couches détectées par CALIOP et considérées dans cette analyse.

Une hypothèse plausible afin d'expliquer les forts color ratio associés aux grandes valeurs de pseudo dépolarisation, est que les mesures CALIPSO à l'extrême sud près de la côte, sont à la fois influencées par les poussières désertiques et par les émissions du nord-est de l'Asie. Les grandes valeurs de pseudo color ratio, sont cohérentes avec les aérosols de grandes tailles issues des poussières désertiques mais résultent aussi, de l'augmentation en taille des aérosols dans le système frontal, responsable du transport vers le nord près des côtes Pacifique, entre le 5 et le 7 avril (Fig.4.12). Les mesures in-situ aéroportées des rapports entre les particules ultrafines (3-70nm) et particules fines (70-200nm), effectuées au dessus de la Sibérie, au printemps 2006 par [Paris et al., 2009], ont effectivement montré que pour des conditions météorologiques similaires, ce rapport diminue pour des masses d'air provenant du nord-est de l'Asie.

Plus au nord-ouest, les feux boréaux de Sibérie deviennent progressivement la principale source d'aérosols [Warneke et al.(2009)], ce qui explique une diminution significative du pseudo color ratio et du pseudo rapport de dépolarisation en accord avec les propriétés de l'aérosol de feux de biomasse [Cattral, 2005]. Ceci signifie que, trois sources sont responsables de la présence du panache d'aérosols (couche VI) au dessus de la Scandinavie, et que la dépolarisation permet de séparer la contribution liée des feux de biomasse et

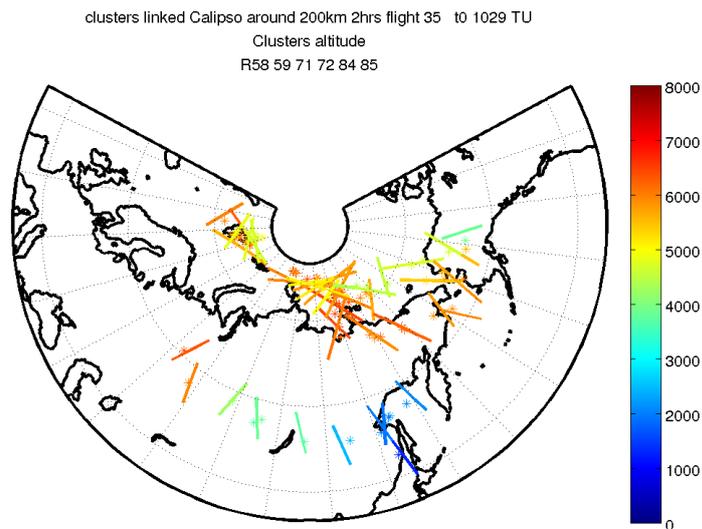
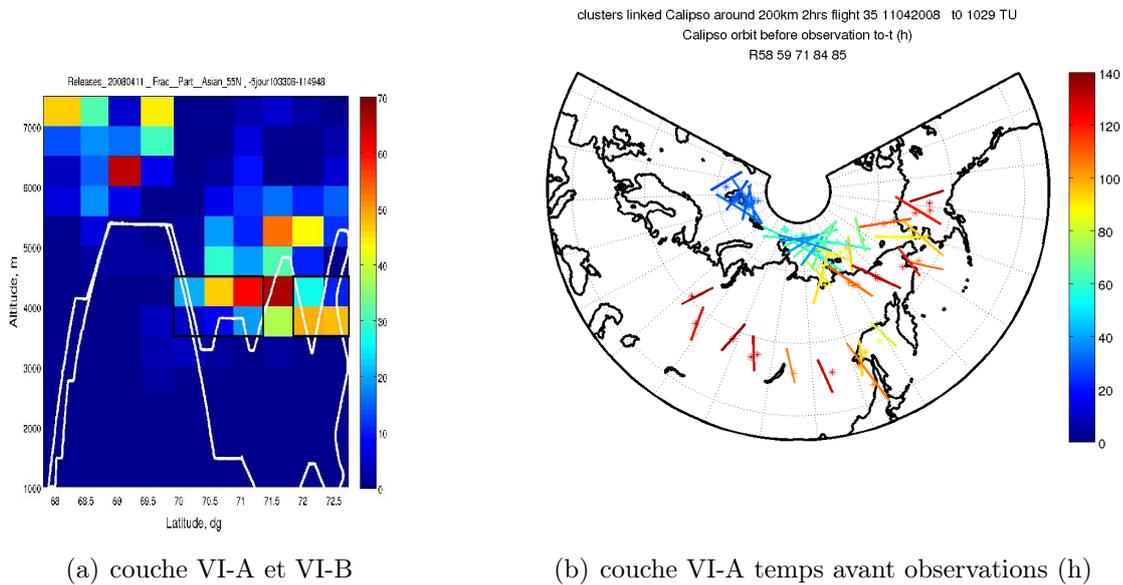
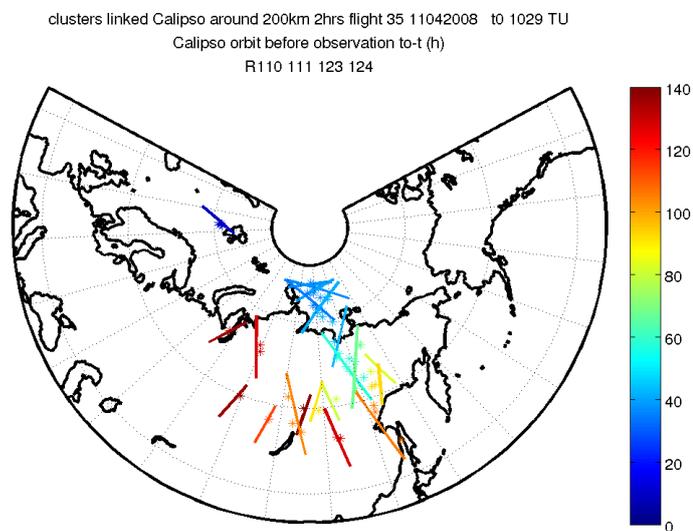
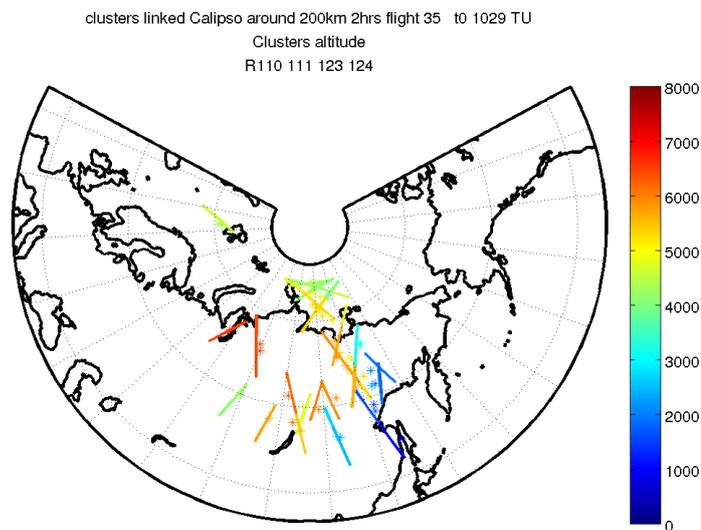


FIGURE 4.15 – Coupe verticale méridienne des fractions de particules calculées par FLEXPART, en %, 6 jours avant les observations, provenant de la basse troposphère ($z < 3\text{km}$) asiatique pour le vol 35 du 11 avril (Fig.4.15(a)). L'altitude de l'avion est tracée en blanc. Portions des traces CALIPSO (lignes colorées) correspondants aux positions des masses d'air calculées le long des rétrotrajectoires FLEXPART (*), initialisées dans le rectangle noir situé entre 70°N et 71.5°N (couche VI-A), en fonction du temps par rapport à l'observation (en heure, Fig.4.15(b)) et à l'altitude des clusters (en mètres, Fig.4.15(c)).

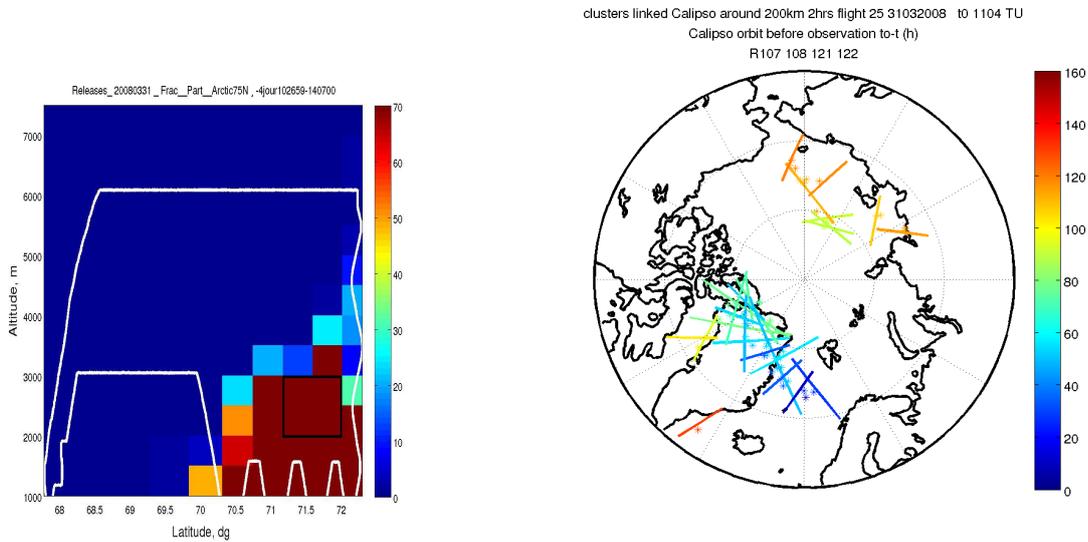


(a) couche VI-B temps avant observations (h)



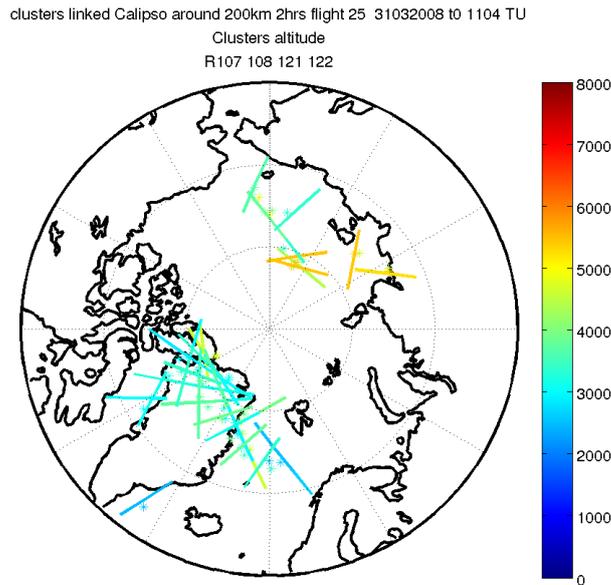
(b) couche VI-B Altitude des clusters (m)

FIGURE 4.16 – Portions des traces CALIPSO (lignes colorées) correspondants aux positions des masses d'air calculées le long des rétrotrajectoires FLEXPART (*), initialisées dans le rectangle noir situé entre 72°N et 73°N (couche VI-B), en fonction du temps à partir de l'observation (en heure, Fig.4.16(a)) et à l'altitude des clusters (en mètres, Fig.4.16(b)).



(a) couche I

(b) couche I temps avant observations (h)



(c) couche I Altitude des clusters (m)

FIGURE 4.17 – Coupe verticale méridienne des fractions de particules calculées par FLEXPART, en %, 4 jours avant les observations, provenant de la troposphère arctique pour le vol 25 du 31 mars (Fig.4.17(a)). L'altitude de l'avion est tracée en blanc. Portions des traces CALIPSO (lignes colorées) correspondant aux positions de masses d'air calculées le long des rétrotrajectoires FLEXPART (*), initialisées dans les rectangles noirs, en fonction du temps à partir de l'observation (en heure, Fig.4.17(b)) et à l'altitude des clusters (en mètres, Fig.4.17(c)).

4.3. Propriétés optiques des couches d'aérosols par CALIOP.

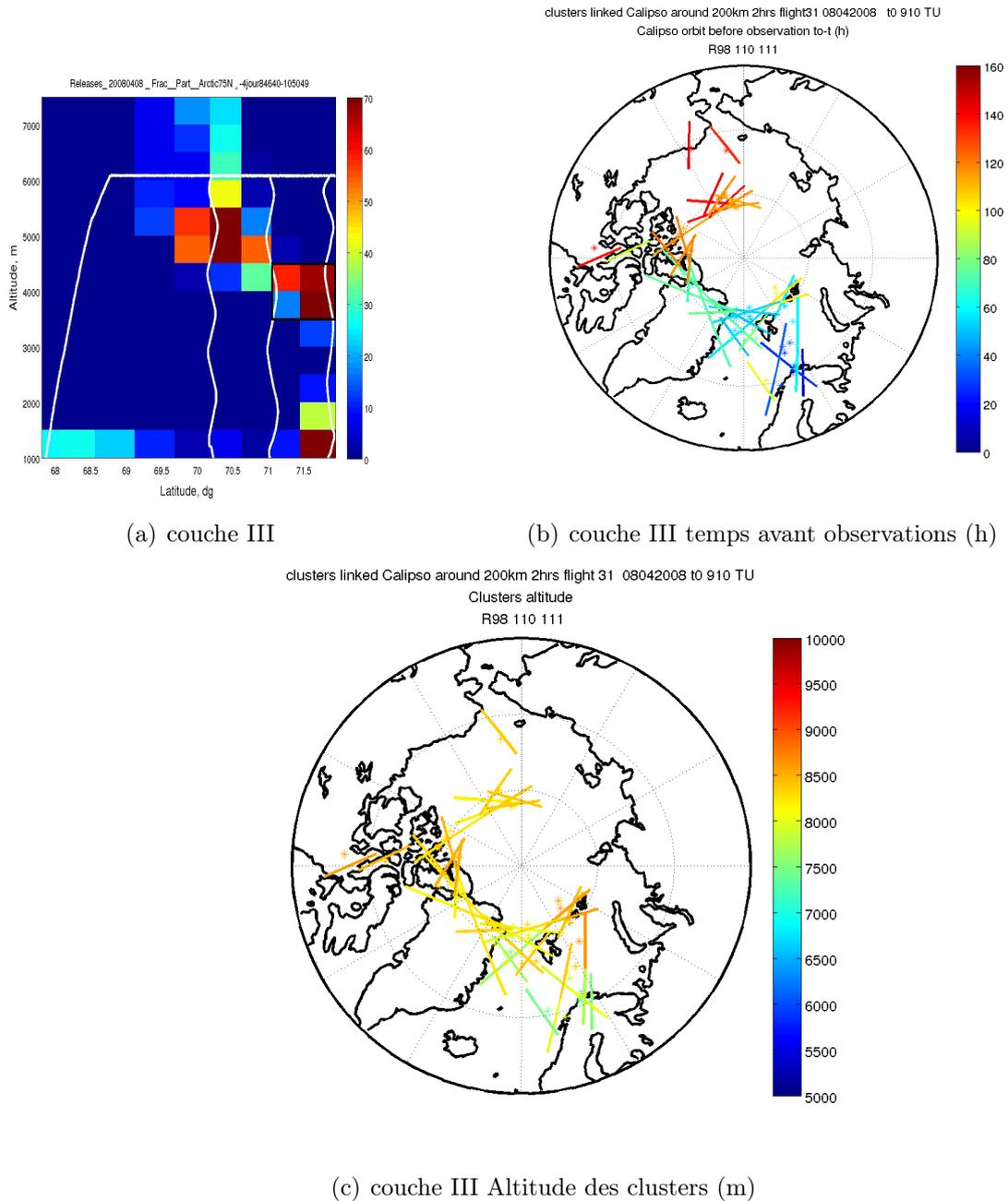


FIGURE 4.18 – Coupe verticale méridienne des fractions de particules calculées par FLEXPART, en %, 4 jours avant les observations, provenant de la troposphère arctique pour le vol 31 du 8 avril (Fig.4.18(a)). L'altitude de l'avion est tracée en blanc. Portions des traces CALIPSO (lignes colorées) correspondant aux positions de masses d'air calculées le long des rétrotrajectoires FLEXPART (*), initialisées dans les rectangles noirs, en fonction du temps à partir de l'observation (en heure, Fig.4.18(b)) et à l'altitude des clusters (en mètres, Fig.4.18(c)).

des émissions du nord-est asiatique, à cause de l'influence des émissions de poussières désertiques dans la bande de latitude 40-50°N.

Les résultats portants sur l'analyse lagrangienne des couches I et III (Tab.3 et 4) montrent :

- deux couches situées à 56°N-37°E et 62°N-78°E, à proximités des sources d'Amérique du Nord (coloré en rose) avec un pseudo color ratio variant entre 0.16 et 0.24 et très peu de dépolarisation (5-6%).
- aux latitudes > 60°N et aux longitudes > 110°E, c'est à dire, les couches dans les régions arctiques de l'Eurasie (colorées en orange) avec une plus grande variabilité du pseudo color ratio, qui varie entre 0.18 et 0.36 et une dépolarisation toujours inférieure à 5%. Ceci indique un grossissement plus marquée de l'aérosol que pour la zone Amérique ce qui peut être dû à l'âge ou aux processus de transport rencontrés par l'aérosol.
- Au sein de la région arctique, on observe un grossissement des particules de la couche I (marqué par une augmentation des pseudo color ratio passant de 0.2-0.3 à 0.35) et plutôt une diminution des grosses particules dans la couche III (diminution du pseudo color ratio de 0.36 à 0.27).

Les faibles variations sur les pseudo color ratio et les dépolarisations, concernant les couches détectées près des sources nord américaines, correspondent aux caractéristiques des aérosols anthropiques. En effet, Pingqing Fu et al. (2009) ont montré que plus de 50% des aérosols se trouvant dans la troposphère nord américaine arctique, à cette période de l'année, sont issues des émissions anthropiques.

Les couches à l'est de 110 °E, peuvent être considérées comme étant des couches âgées provenant d'Asie, comme il a été rapporté dans l'analyse des voies de transport effectuée au printemps 2008 par Fuelberg et al. (2009). Ceci explique en partie, les valeurs intermédiaires de dépolarisation, entre celles qu'on trouve en Scandinavie et dans le nord-est asiatique.

Par ailleurs, on constate qu'en Arctique, l'aérosol peut connaître différentes évolutions en taille. Ainsi, la couche VI présente une faible diminution du pseudo color ratio par rapport à ceux observés au nord est de l'Asie, et concomitant avec les faibles β_{532} . Ceci semble indiquer un rôle plus faible des plus grosses particules soit, par mélange de différents types d'aérosols présents au dessus de l'Asie, ou bien, par des processus de dépôts affectants les gros aérosols hydrophiles pendant les processus de transport. Le grossissement des particules constituant la couche I, au contraire des couches III et VI, peut être dû à la faible altitude des couches d'aérosols correspondant à l'histoire de cette couche. Le vieillissement peut être plus marqué à basse altitude, notamment par des effets de glaciation.

4.3. Propriétés optiques des couches d'aérosols par CALIOP.

TABLE 2 – Caractéristiques des couches d'aérosol asiatiques à partir des observations CALIOP correspondant aux simulations FLEXPART initialisées à 69.5° N - 72.5° N, 3.5-4.5 km en référence aux couches VI-A et VI-B du vol 35 du 11/04/2008.

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}	CDA Score	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	-37	D ¹
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	-96	P.D. ²
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	-88	P.D. ²
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	-92	P.D. ²
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	-98	P.D. ²
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	-46	D ¹
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	-87	D ¹
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	-94	D ¹
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	-48	D ¹
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	-94	SM ⁴
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	-65	D ¹
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		
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	-73	C.C. ³
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	-95	C.C. ³
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	-71	C.C. ³
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	-86	S. ⁴

D : Dust. C.C. : Clean Continental. P.D. : Polluted Dust. S : Smoke.

TABLE 3 – Caractéristiques des couches d’aérosol arctiques à partir des observations CALIOP correspondant aux simulations FLEXPART initialisées) à 71.9°N - 72.2°N, 2-2.5 km en référence à la Couche I du vol 25 du 31/03/2008.

Date	Time UT	CALIOP		Flexpart layer alt, km	Mean β_{532} $\text{km}^{-1}\text{sr}^{-1}$	Pseudo Color ratio	Pseudo Mean δ_{532}	FCF
		Start Lat./Lon	End Lat./Lon					
26/03	05 :14	62.1/-37.93	62.15/-37.9	1.5-3.5	20 ± 11.10^{-4}	0.16 ± 0.46	0.06 ± 0.06	PD
26/03	15 :07	73.76/-171.56	74.33/-170.25	2.7-5.8	13 ± 1.10^{-4}	0.18 ± 0.09	0.05 ± 0.02	CC
26/03	20 :04	73.05/112.77	74.25/115.37	3.4-6.2	19 ± 3.10^{-4}	0.26 ± 0.18	0.03 ± 0.02	PD
27/03	07 :36	69.46/-66.14	74.25/-57.69	2-4	20 ± 4.10^{-4}	0.26 ± 0.17	0.04 ± 0.03	PC+PD
27/03	18 :16	79.19/147.93	80.61/159.69	3.5-6.5	14 ± 1.10^{-4}	0.28 ± 0.1	0.04 ± 0.04	CC
27/03	19 :55	81.56/150.37	81.7/154.95	3.5-6.4	16 ± 1.10^{-4}	0.28 ± 0.12	0.03 ± 0.04	CC
28/03	07 :27	79.92/-44.65	80.3/-41.34	2.1-4.3	15 ± 2.10^{-4}	0.2 ± 0.1	0.05 ± 0.06	CC
28/03	09 :06	81.28/-53.45	81.72/-23.76	1.8-4.1	18 ± 2.10^{-4}	0.22 ± 0.07	0.04 ± 0.07	PD
28/03	10 :45	81.6/-44.4	81.73/-49.03	2.1-5.6	13 ± 2.10^{-4}	0.36 ± 0.13	0.04 ± 0.08	PD
28/03	12 :24	81.8/-79.36	81.82/-82.23	3.6-5.6	18 ± 2.10^{-4}	0.35 ± 0.06	0.03 ± 0.05	CC
29/03	04 :53	78.18/-16.77	80.46/-1.06	2.1-5.5	16 ± 2.10^{-4}	0.31 ± 0.1	0.04 ± 0.05	CC
29/03	08 :11	80.81/-46.64	80.93/-45.1	2.4-4.4	16 ± 1.10^{-4}	0.33 ± 0.08	0.04 ± 0.04	CC
29/03	09 :50	80.79/-71.53	81.08/-67.61	2.3-4.3	16 ± 2.10^{-4}	0.33 ± 0.12	0.03 ± 0.05	CC
30/03	03 :57	74.58/-15.17	78.46/-1.49	1.9-4.8	18 ± 2.10^{-4}	0.19 ± 0.09	0.02 ± 0.02	CC

D : Dust. C.C. : Clean Continental. P.D. : Polluted Dust. S : Smoke.

TABLE 4 – Caractéristiques des couches d’aérosol arctiques à partir des observations CALIOP correspondant aux simulations FLEXPART initialisées à 71.2° N -71.6° N, 3.5-4.5 km en référence à la couche III du vol 31 du 08/04/2008.

ù

Date	Time UT	CALIOP		Flexpart layer alt, km	Mean β_{532} $\text{km}^{-1}\text{sr}^{-1}$	Pseudo Color ratio	Pseudo Mean δ_{532}	FCF
		Start Lat./Lon	End Lat./Lon					
03/04	07 :44	56.79/-78.49	58.66/-77.39	6-8	10 ± 1^{-4}	0.24 ± 0.13	0.05 ± 0.02	P.D.
03/04	15 :06	80.02/-158.11	80.39/-154.75	5.1-7.7	16 ± 3^{-4}	0.36 ± 0.3	0.03 ± 0.17	C.C
05/04	03 :21	77.11/1.83	79.6/14.74	5.4-7.8	14 ± 2^{-4}	0.24 ± 0.18	0.04 ± 0.07	C.C
06/04	00 :47	76.24/37.4	76.77/39.21	6.3-8.3	9 ± 1^{-4}	0.23 ± 0.15	0.04 ± 0.03	C.C
06/04	04 :05	81.45/25.56	81.62/30.05	4.3-7.8	14 ± 2^{-4}	0.27 ± 0.05	0.03 ± 0.07	C.C
08/04	01 :27	68.27/25.06	69.02/25.98	3.3-6	14 ± 3^{-4}	0.11 ± 0.12	0.03 ± 0.02	P.D.

D : Dust. C.C. : Clean Continental. P.D. : Polluted Dust. S : Smoke.

4.3.3 Etude des couches II, IV et V et associées aux régimes de transport de secteur Sud.

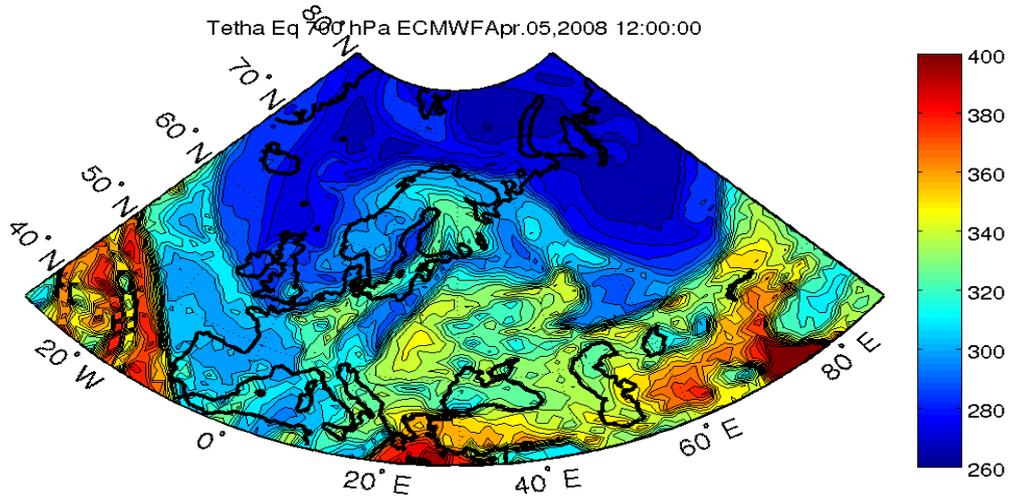
Identification des sources.

Les couches II et IV, observées au cours des vols 31 et 32, le 8 avril, proviennent à la fois du nord ouest de l'Europe et de Russie (Fig. 4.4(b) et 4.6(b)). Cette diversité est liée à une zone frontale rencontrée en Europe central vers 15-20°E, marquée sur la carte de température potentielle du 5 avril par un gradient important de θ_e (~ 50 K). Celle-ci, est la résultante d'un noyau dépressionnaire sur le Danemark (Fig.4.19(a) et Fig.4.19(b)). De plus, une anomalie de vorticit e situ ee sur la mer Noire, permet   un retour d'est de se mettre en place, puis de connaitre un soul evement au devant de la zone frontale, par le warm conveyor belt. Ceci, permet le transport de masses d'air ayant  t e influenc ees par des feux en Russie.

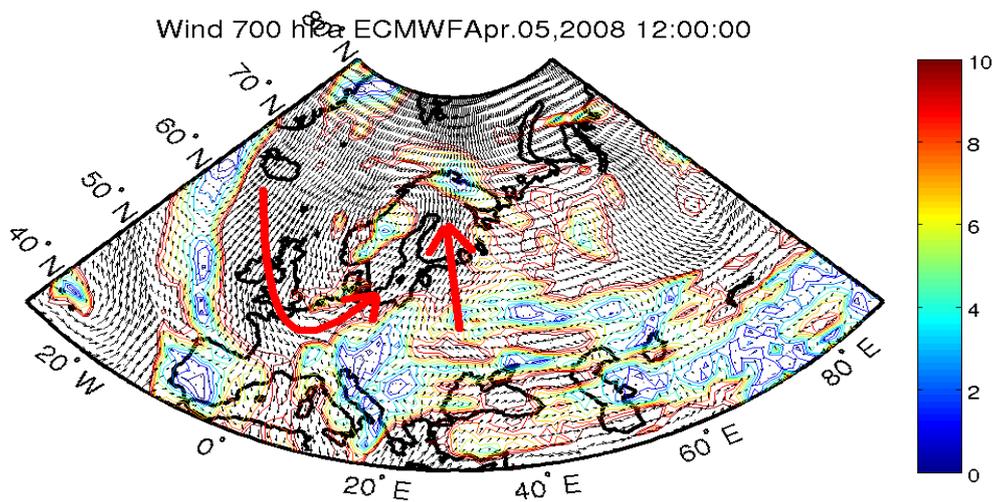
La couche V, observ ee au sud du vol 35, le 11 avril, provient du sud de l'Europe centrale (Fig.4.8(a)). Elle a connu un transport rapide, qui est d u   deux centres d epressionnaires. Le premier, au dessus du B en elux et le second, au nord-est de l'Europe, comme le montre les cartes de temp erature potentielle et de vent du 7 avril (Fig.4.20(a) et Fig.4.20(b)). Cette confluence permet un  coulement de secteur sud intense des moyennes latitudes europ eennes vers la Scandinavie.

Les cartes de sensibilit e potentielle d' mission (SPE) de la figure 1.19, sont repr esentatives des r egions affectant les couches II, IV et V. Les cartes de SPE, montrent l'impact des sources nord europ eennes pour la couche II (Fig.4.21(a)), d'Europe de l'est et m eme d'Asie centrale pour la couche IV (Fig.4.21(b)) alors que la couche V est influenc ee par les  missions d'Europe centrale (Fig.4.21(c)). Notons pour la couche IV, une plus grande diversit e des sources, avec une contribution potentielle des  missions anthropiques de l'ouest de la Russie, des d serts d'Asie centrale (le Karakoum et le Kyzyl Kum) et des feux agricoles en Europe de l'est [Eckhardt et al., 2006]. En effet, la carte MODIS des feux, montre une densit e importante de feux dans cette r egion, entre le 1er et le 9 avril 2008 (Fig.4.22). Nous nous attendons donc,   observer des diff erences entre les propri et es optiques pour les couches d'a rosols advect ees par un flux de sud   travers l'Europe.

Comme il a  t e fait pr ec edemment, on utilise les trajectoires des masses d'air afin de voir les co ncidences entre les orbites CALIPSO et ces trois couches d'a rosols. Cela a  t e fait pour les trois zones correspondant aux rectangles noirs sur les coupes verticales de fractions de particules, calcul ees par FLEXPART, (Fig.4.23(a), 4.24(a) et 4.25(a) pour respectivement les couches II, IV et V.). Les sections d'orbites, ainsi que les positions des masses d'air calcul ees par FLEXPART correspondantes en fonction du temps  coule par rapport   l'observation, sont montr ees sur les figures 4.23(b), 4.24(b), 4.25(b) et sur les figures 4.23(c), 4.24(c), 4.25(c) en fonction de l'altitude des clusters consid er es. Nous constatons que les traces CALIOP, permettent l' tude de l'ensemble des sources transport ees par ce flux de sud.

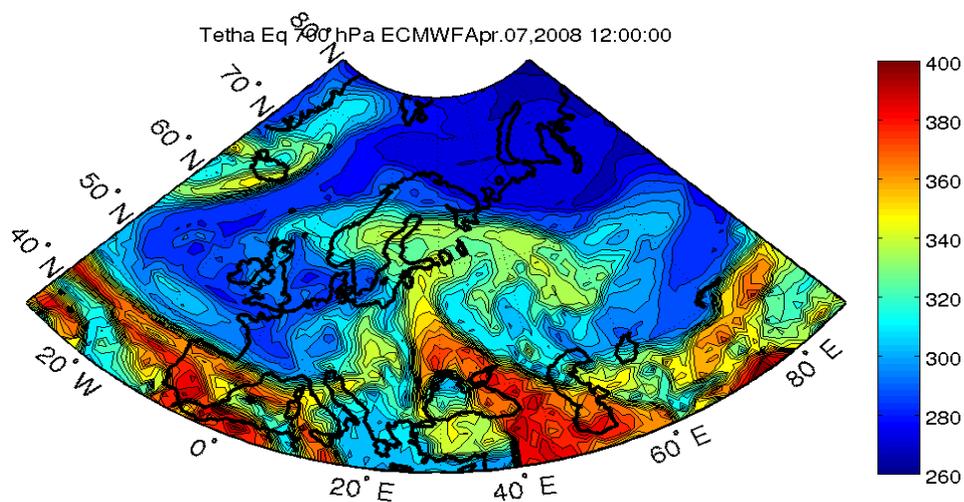


(a) θ_e 05/04/2008

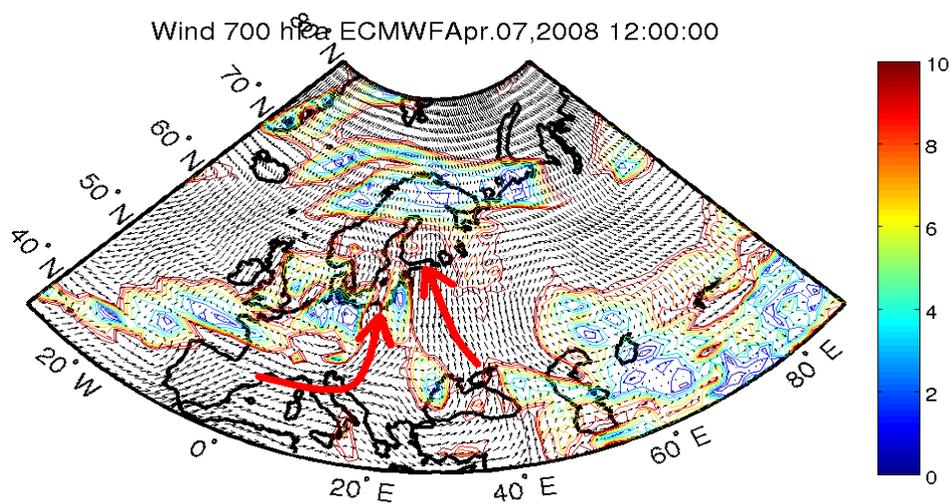


(b) vent 05/04/2008

FIGURE 4.19 – Carte de température potentielle équivalente à 700 hPa en K (en haut) et champs de vent (en bas) à 700 hPa issue de l'CEPMMT pour le 05/04/2008 à 12 :00TU. Les isotachs (m.s⁻¹) sont représentées par les isolignes colorées.



(a) θ_e 07/04/2008



(b) vent 07/04/2008

FIGURE 4.20 – Carte de température potentielle à 700 hPa en K (en haut) et champs de vent (en bas) à 700 hPa issue de l'CEPMMT pour le 07/04/2008 à 12 :00TU. Les isotach (m.s⁻¹) sont représentées par les isolignes colorées.

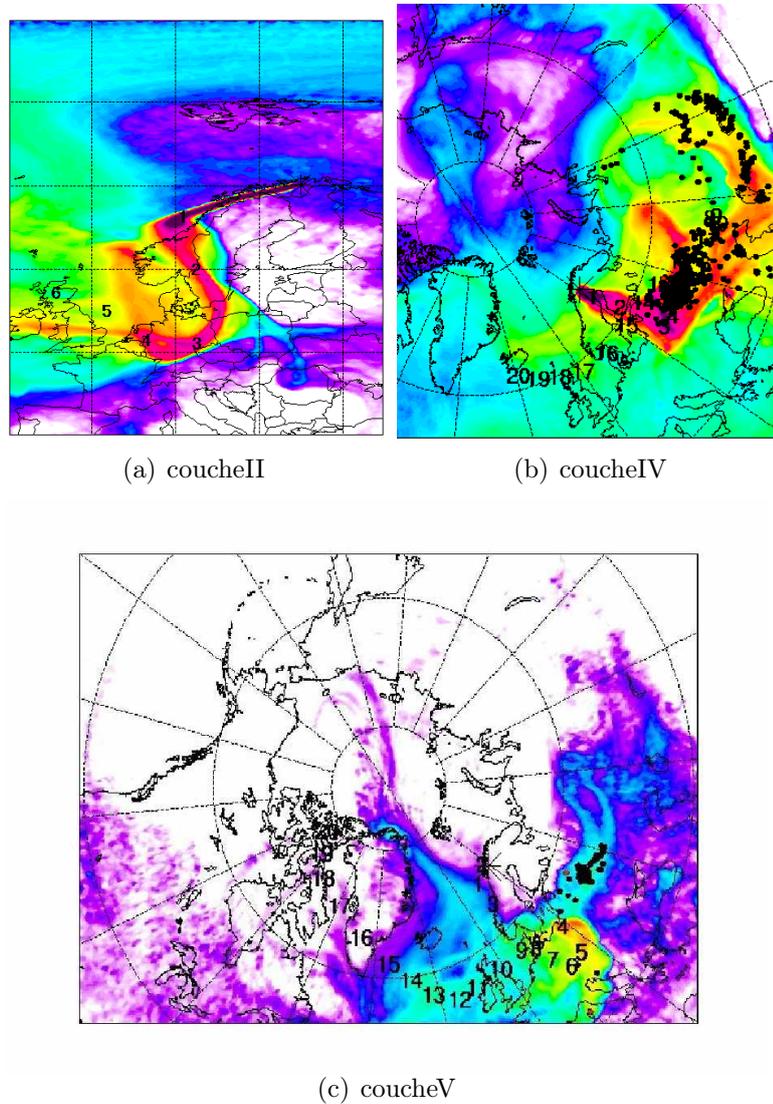


FIGURE 4.21 – Potential Emission Sensivity (PES) en ns/kg pour 3 points le long de la trajectoire de l'avion à 70° N-3200m (couche II, en haut à gauche) pour le vol 31, 68.3° N-4000m (couche IV, en haut à droite) pour le vol 32 du 8 avril et à 70.2° N-4200m (couche V, en bas). Les nombres indiqués le temps passé, en jour(s), depuis l'émission le long de la trajectoire moyenne. (voir http://transport.nilu.no/flexpart-projects?cmp=POLARCAT_FRANCE)

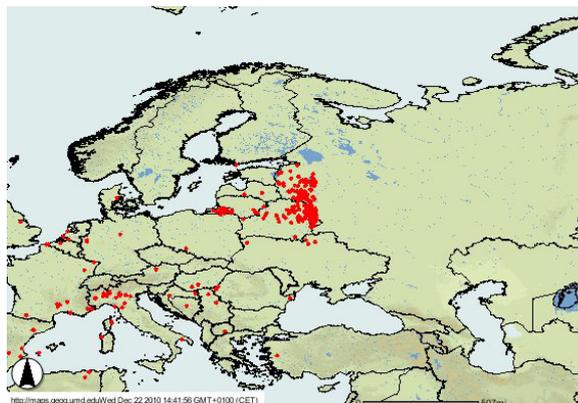


FIGURE 4.22 – Feux détectés par MODIS sur une période de 10 jours entre le 31/03/2008 et le 09/04/2008 au dessus de l'Europe de l'est. Chaque point coloré indique la position des zones d'incendie pendant la période. Les points varient du rouge au jaune, en fonction de l'augmentation du nombre de feux.

Propriétés optiques des panaches d'aérosols transportés.

Afin d'étudier l'évolution temporelle des couches d'aérosol transportées par un flux de secteur sud, les coefficients de rétrodiffusion à 532nm, le pseudo color ratio entre 1064 et 532 nm et le pseudo rapport de dépolarisation à 532 nm, sont présentés dans les tableaux 5, 6 et 7 en relation avec les couches II, IV et V. Nous discuterons des couches d'aérosols ayant des coefficients de rétrodiffusion supérieurs à $1.6 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$. Un critère supplémentaire sera la position des portions d'orbite par rapport à l'est et l'ouest de la zone de confluence, observée le 7 avril vers 15-20 °E. L'analyse des différents tableaux met en avant quatre résultats pour les données CALIOP :

- les couches près de la zone d'observation (latitudes $> 65^\circ\text{N}$ et longitudes comprises entre 15° et 25°E , colorées en vert dans les tables) présentent des β_{532} modérés ($1.6 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$) des color ratio relativement faibles (0.1-0.27) et peu de dépolarisation ($< 5\%$).
- à l'est de l'Europe, pour des latitude $< 65^\circ\text{N}$ et des longitudes $> 20^\circ\text{E}$, colorées en doré dans les tables, on observe des β_{532} variant entre $2\text{-}3.7 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$, des pseudo color ratio de l'ordre de 0.36 ± 0.06 , et de la dépolarisations de l'ordre de $9 \pm 4\%$. Néanmoins, on peut distinguer le cas des aérosols peu dépolarisants ($3 \pm 7\%$) qui présentent des valeurs de pseudo color ratio autour de 0.3 (texte en noir), et les couches dépolarisantes (9-13%) qui ont des plus forts pseudo color ratio (de l'ordre de 0.4) (texte en rouge).
- à l'ouest de l'Europe, pour des latitude $< 65^\circ\text{N}$ et des longitudes $< 10^\circ\text{E}$, colorées en bleu foncé dans les tables, comparées aux valeurs obtenues à l'est, on observe une plus grande variabilité sur les paramètres optiques, des valeurs élevés sur les β_{532} ($4.8 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$), des pseudo color ratio moyens de 0.32 ± 0.07 , ainsi que des faibles dépolarisations, avec des valeurs inférieures à $6 \pm 2\%$.
- vers 50°N , dans la bande de longitudes $15\text{-}20^\circ\text{E}$ (colorées en gris dans les tables), au-

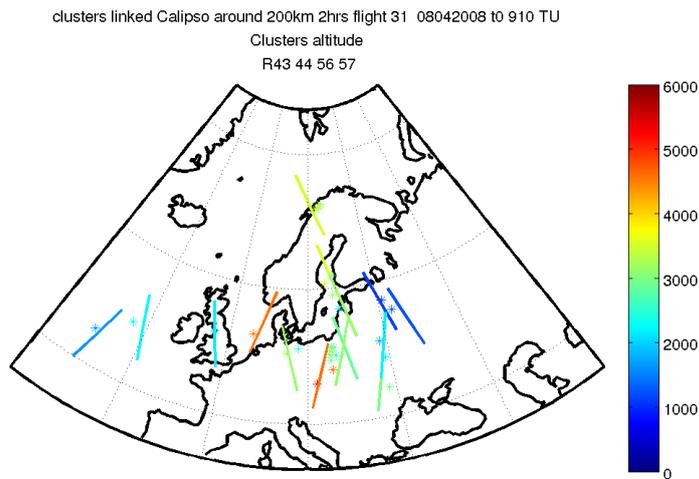
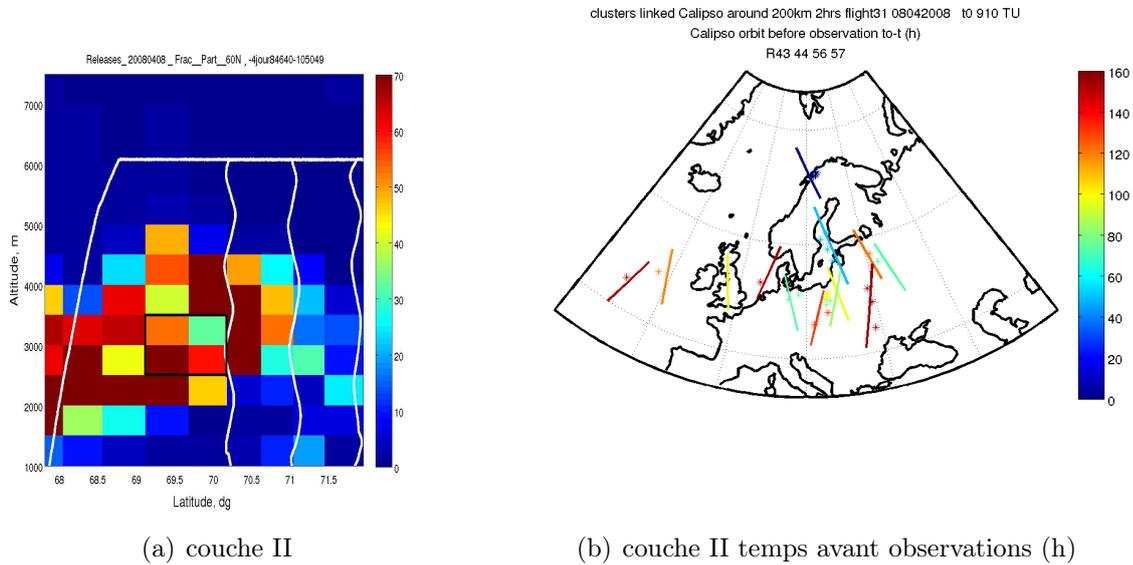
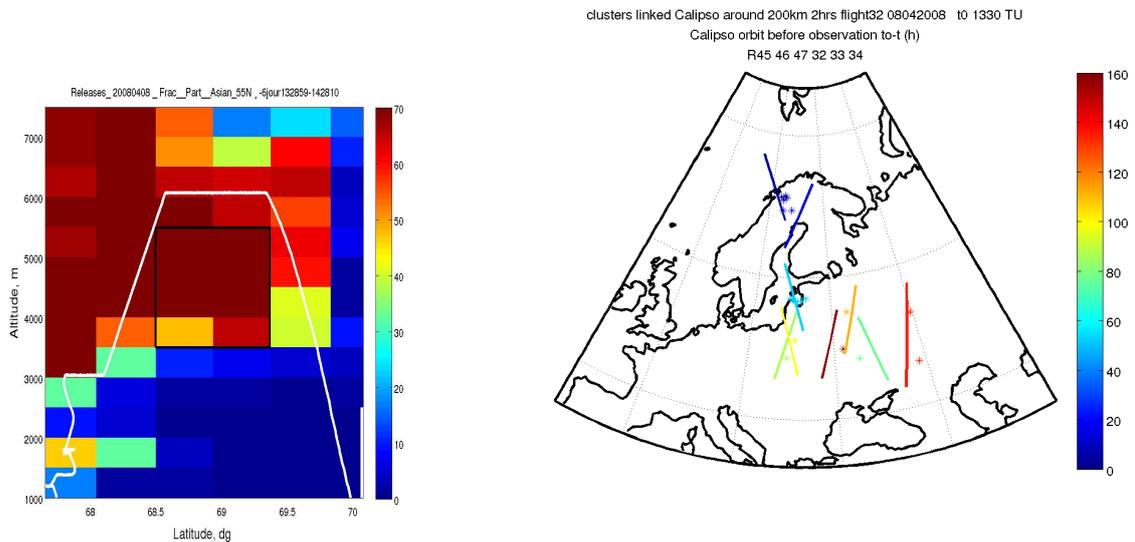
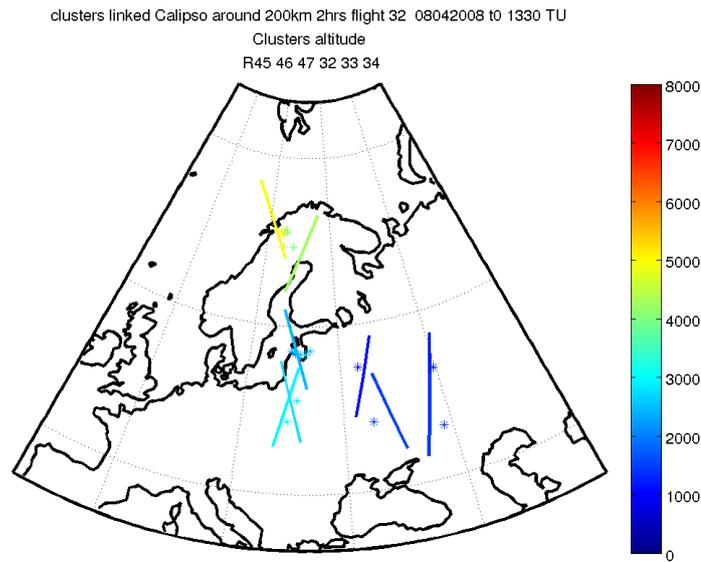


FIGURE 4.23 – Coupe verticale méridienne des fractions de particules calculées par FLEXPART, en %, 4 jours avant les observations, provenant de la basse troposphère ($z < 3\text{km}$) européenne pour le vol 31 du 8 avril (Fig.4.23(a)). L'altitude de l'avion est tracée en blanc. Portion des traces CALIPSO (lignes colorées) correspondant aux positions de masses d'air calculées le long des rétrotrajectoires FLEXPART (*), initialisées dans les rectangles noirs, en fonction du temps à partir de l'observation (en heure, Fig.4.23(b)) et à l'altitude des clusters (en mètres, Fig.4.23(c)).



(a) couche IV

(b) couche IV temps avant observations (h)



(c) couche IV Altitude des clusters (m)

FIGURE 4.24 – Coupe verticale méridienne des fractions de particules calculées par FLEXPART, en %, 4 jours avant les observations, provenant de la basse troposphère ($z < 3\text{km}$) européenne pour le vol 35 du 11 avril (Fig.4.25(a)). L'altitude de l'avion est tracée en blanc. Portions des traces CALIPSO (lignes colorées) correspondant aux positions de masses d'air calculées le long des rétrotrajectoires FLEXPART (*), initialisées dans les rectangles noirs, en fonction du temps à partir de l'observation (en heures, Fig.4.24(b)) et à l'altitude des clusters (en mètres, Fig.??).

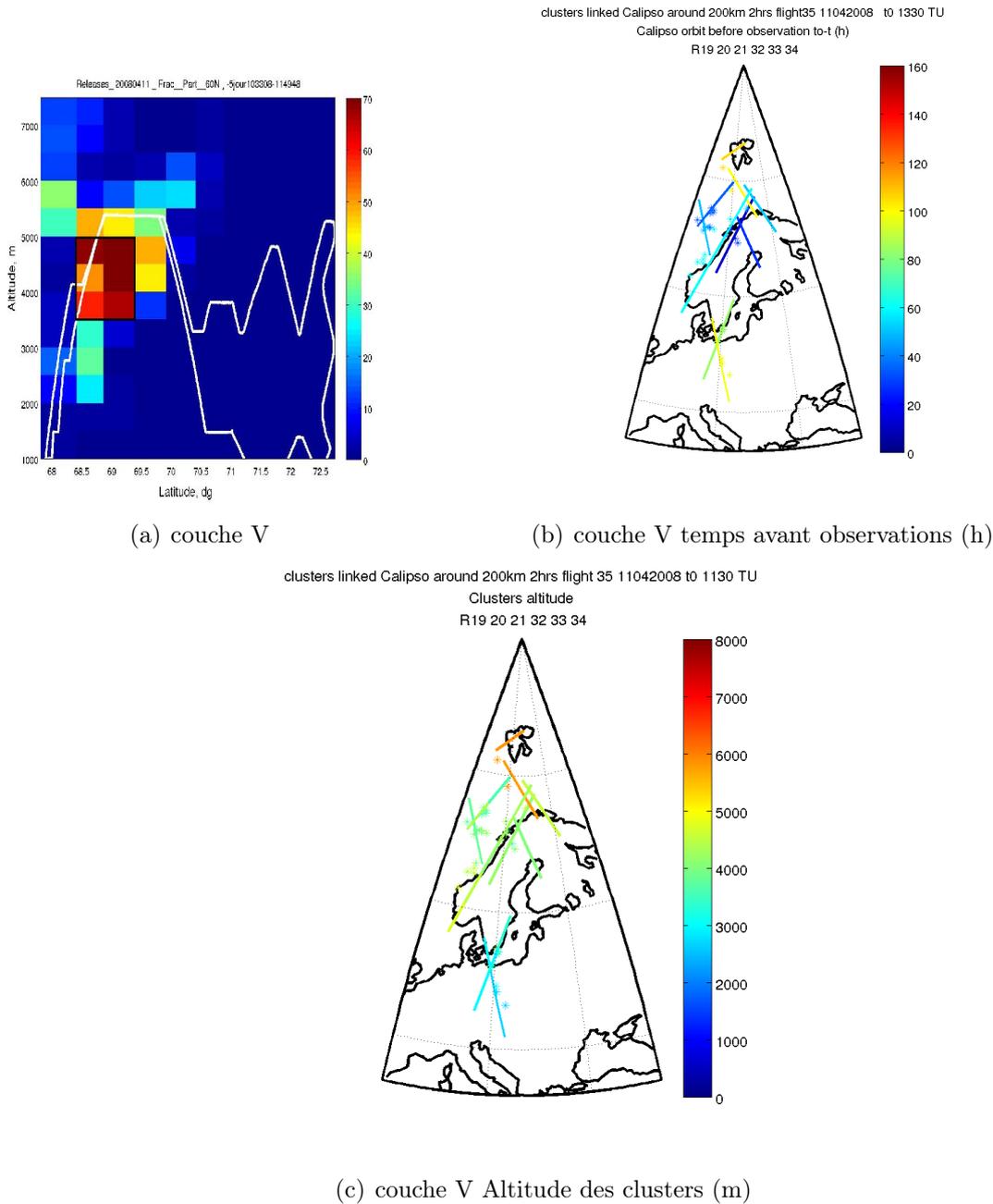


FIGURE 4.25 – Coupe verticale méridienne des fractions de particules calculées par FLEXPART, en %, 4 jours avant les observations, provenant de la basse troposphère ($z < 3\text{km}$) européenne pour le vol 31 du 8 avril (Fig.4.23(a)) et pour le vol 35 du 11 avril (Fig.4.25(a)) et 6 jours pour la basse troposphère asiatique pour le vol 32 du 8 avril (Fig.4.24(a)). L'altitude de l'avion est tracée en blanc. Portions des traces CALIPSO (lignes colorées) correspondants aux positions de masses d'air calculées le long des rétrotrajectoires FLEXPART (*), initialisées dans les rectangles noirs, en fonction du temps à partir de l'observation (en heures, Fig.4.25(b)) et à l'altitude des clusters (en mètres, Fig.4.25(c)).

dessus de l'Allemagne, des couches avec les plus forts pseudo color ratio (0.45 ± 0.01) et des pseudo rapports de dépolarisation intermédiaires de 8-9% entre les sources dépolarisantes ($>9\%$) et non dépolarisantes ($<6\%$).

Le fait que, proche de la zone d'exploration par l'avion, nous retrouvons des valeurs de β_{532} , de pseudo color ratio et de rapport de dépolarisation, plus faibles que pour les autres couches observées par CALIOP, plus au sud, est à nouveau cohérent avec nos observations lidar, où des valeurs proches de celles-ci, furent observées.

Les propriétés optiques des couches provenant de l'est de l'Europe, montrent la présence de particules plus dépolarisantes, pour lesquelles, les valeurs de pseudo color ratio élevées (0.4) suggère un rôle des aérosols désertiques. La présence dans la même région, de couches aux pseudo color ratio plus faible (0.3) et sans dépolarisation, est cohérente avec un mélange aérosols désertiques et aérosols de combustions, transportés depuis l'Asie centrale vers la Scandinavie. Ces régions sont affectées par les émissions des feux agricoles, ainsi que des émissions anthropiques proches de Moscou (55° - 45° N 37° - 42° E). Ces caractéristiques sont similaires à l'étude lagrangienne pour la couche VI-A qui résulte d'un mélange de poussières désertiques et d'aérosol, issue des émissions anthropiques du nord-est de l'Asie. On notera que les grosses particules subsistent dans la zone des mesures avion, puisque les observations in-situ et lidar montrent aussi la présence des plus grosses particules ainsi que de la dépolarisation pour la couche IV provenant de cette partie de l'Europe.

Par ailleurs, les pseudo color ratio observés à l'ouest de l'Europe sont similaires à ceux observés pour l'Europe orientale quand il n'y a pas la présence de gros aérosols désertiques. Ces valeurs sont, en effet, différentes à ce que l'on a pu voir concernant les sources nord américaines ou pour les feux sibériens dans la partie précédente, caractérisées par des pseudo color ratio de l'ordre de 0.2. Les particules originaires des sources d'émissions anthropiques en Europe, ont donc dû grossir rapidement lors de leur transport vers la troposphère libre arctique.

Enfin, les couches au dessus de l'Allemagne présentent les plus grosses particules avec des dépolarisations intermédiaires. Cette zone est la dernière étape avant le passage sur la Scandinavie et se situe dans la zone de convergence des masses d'air ayant connu les transports frontaux à l'est et à l'ouest de l'Europe. Elles sont donc, un mélange d'aérosols anthropiques, provenant de l'ouest et de l'est de l'Europe, d'aérosols de combustions ainsi qu'une fraction de poussières désertiques donnant ces dépolarisations intermédiaires.

TABLE 5 – Caractéristiques des couches d’aérosol arctiques à partir des observations CALIOP correspondant aux simulations FLEXPART initialisées à 69.5° N - 70° N, 3-3.5 km en référence à la couche II du vol 31 le 08/04/2008.

Date	Time UT	CALIOP		Flexpart layer alt, km	Mean β_{532} $\text{km}^{-1}\text{sr}^{-1}$	Pseudo Color ratio	Pseudo Mean δ_{532}	FCF
		Start Lat./Lon	End Lat./Lon					
02/04	00 :25	49.44/27.68	54.36/29.92	1-4	18 ± 7.10^{-4}	0.24 ± 0.34	0.03 ± 0.03	P.D
02/04	02 :03	57.64/6.98	58.64/7.58	3.6-5.6	16 ± 5.10^{-4}	0.34 ± 0.39	0.09 ± 0.06	D.
02/04	03 :42	47.25/-22.64	50.2/-21.44	1-2.6	37 ± 15.10^{-4}	0.31 ± 0.22	0.03 ± 0.02	P.D
03/04	01 :08	51.8/17.88	51.93/17.94	3.6-6.4	14 ± 4.10^{-4}	0.32 ± 0.34	0.06 ± 0.07	P.D
03/04	13 :27	52.45/-16.09	54.16/-16.92	1.2-3.2	48 ± 91.10^{-4}	0.4 ± 0.40	0.07 ± 0.09	D.
04/04	10 :52	50.73/23.31	51.39/23.02	1.8-4.2	22 ± 5.10^{-4}	0.41 ± 0.29	0.13 ± 0.14	D.
05/04	00 :56	50.31/20.31	51.67/20.91	1.5-4.1	13 ± 7.10^{-4}	0.29 ± 0.61	0.09 ± 0.09	D.
05/04	09 :57	52.86/36.24	55.32/35.02	1-2.2	37 ± 8.10^{-4}	0.37 ± 0.16	0.12 ± 0.14	D.

D : Dust. C.C. : Clean Continental. P.D. : Polluted Dust. S : Smoke.

TABLE 6 – Caractéristiques des couches d’aérosol provenant d’Europe orientale à partir des observations CALIOP correspondant aux simulations FLEXPART initialisées à 68.59° N - 69.1° N, 3.5-5 km en référence à la couche IV du vol 32, du 08/04/2008.

Date	Time UT	CALIOP		Flexpart layer alt, km	Mean β_{532} $\text{km}^{-1}\text{sr}^{-1}$	Pseudo Color ratio	Pseudo Mean δ_{532}	FCF
		Start Lat./Lon	End Lat./Lon					
02/04	00 :25	53.13/29.32	53.26/29.38	1.6-3.6	23 ± 6.10^{-4}	0.36 ± 0.92	0.03 ± 0.03	S.
02/04	23 :29	50.03/41.83	54.64/43.97	1-2.4	28 ± 22.10^{-4}	0.39 ± 0.24	0.12 ± 0.08	CC+P.D.
04/04	00 :12	54.23/32.95	57.9/34.94	1-2	37 ± 10.10^{-4}	0.34 ± 0.16	0.07 ± 0.05	CC+S
05/04	00 :56	50.31/20.31	51.41/20.79	2-4	16 ± 12.10^{-4}	0.46 ± 0.62	0.09 ± 0.1	CC+P.D.
05/04	09 :57	50.98/37.1	54.49/35.45	1-2.5	37 ± 9.10^{-4}	0.38 ± 0.18	0.09 ± 0.2	D+PD
08/04	01 :27	65.04/21.66	69.02/25.98	3-5.3	16 ± 4.10^{-4}	0.27 ± 0.16	0.04 ± 0.03	D+S

D : Dust. C.C. : Clean Continental. P.D. : Polluted Dust. S : Smoke.

TABLE 7 – Caractéristiques des couches d’aérosol provenant d’Europe orientale à partir des observations CALIOP correspondant aux simulations FLEXPART initialisées à 68.5° N - 69° N, 3.5-5 km en référence à la couche V du vol 35 le 11/04/2008.

Date	Time UT	CALIOP		Flexpart layer alt, km	Mean β_{532} $\text{km}^{-1}\text{sr}^{-1}$	Pseudo Color ratio	Pseudo Mean δ_{532}	FCF
		Start Lat./Lon	End Lat./Lon					
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	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	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	P.D.
10/4	10 :16	64.76/23.94	64.88/23.82	2.6-5.0	39 ± 13.10^{-4}	0.40 ± 0.30	0.10 ± 0.14	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	C.C.

4.3.4 Analyse de la classification des produits opérationnels (FCF).

Le "feature classification flag" (FCF) dérivé des produits opérationnels est aussi rapporté dans les tableaux. Cette classification est définie à partir des amplitudes des coefficients de rétrodiffusion à 532 nm, des pseudo color ratio et dépolarisation, ainsi que des altitudes et des zones où elles sont détectées ([Liu et al.(2004)]). Ceci peut être comparé avec notre interprétation sur l'influence des sources sur ces couches d'aérosols. On peut voir un bon accord entre les deux pour les couches où nous supposons une contribution mixte entre les poussières désertiques et les émissions anthropiques asiatiques du nord-est de l'Asie et d'Europe orientale (couches en doré). La plus grande contradiction est pour les couches que nous considérons comme ayant été influencées par les feux de Sibérie alors que les produits opérationnels CALIOP suggèrent une contribution liée à des sources de poussières. L'analyse CALIOP accorde un poids important à la petite augmentation du δ_{532} mais ne tient pas compte les nombreux épisodes de feux ayant eu lieu en avril 2008 en Sibérie.

Le FCF de CALIOP tente aussi de définir les couches rencontrées après plusieurs jours de transport à travers l'Arctique, comme de l'air clair continental alors que notre analyse montre une connection entre la partie polluée de l'Asie et la région scandinave. Ceci, montre la possible limite du FCF CALIOP pour attribuer de façon précise la nature de l'aérosol après plusieurs jours de transport, qui comporte une large baisse des coefficients de rétrodiffusion.

4.4 Conclusion

L'analyse détaillée de quatre vols (31 mars, les deux vols du 8 avril et le 11 avril) nous a permis d'étudier six couches d'aérosols correspondant à différentes zones sources et différentes contributions en aérosol dépolarisant. Dans les six cas étudiés, seul les vols du 8 et 11 avril possèdent des mesures in-situ clairement associées à des observations lidar. Les mesures du 8 et du 11 avril montrent une bonne corrélation entre les augmentations en CO dans les couches II, V et VI, ce qui indique une fraction significative de particules issue de feux de biomasse ou d'émissions anthropiques.

Les mesures in situ du spectre de taille des particules pour ces quatre couches, sont cohérentes avec les analyses lidar des pseudo color ratio. En effet, les spectres révèlent des particules de plus grosses tailles (50-350 nm) pour les couches IV et VI, ce qui est cohérent avec leurs plus grands pseudo colors ratio (0.15-0.2). Ceci confirme aussi la possibilité d'utilisation de ce paramètre pour caractériser l'aérosol.

La comparaison entre les données CALIOP et avion, au dessus de la région scandinave, montre un accord raisonnable pour les variations relatives du pseudo color ratio et du pseudo rapport de dépolarisation, compte tenu des incertitudes importantes sur les estimations CALIOP de ces paramètres (50-200%) et des décalages dans l'espace et le temps (deux heures et sur une bande en longitude/latitude de 500km par 800km). Néanmoins, ces résultats montrent que les données aérosol CALIOP peuvent être utilisés pour relier les mesures avions à une étude sur l'évolution des propriétés optiques des couches d'aérosol basée uniquement sur les donnée CALIOP.

Pour caractériser cette évolution des propriétés de l'aérosol, entre les zones sources (i.e. d'Asie, d'Europe centrale, d'Amérique du nord) et l'Arctique, le transport des différentes couches calculé par FLEXPART, a été combiné avec la position des orbites CALIPSO observées 4-5 jours avant les mesures aéroportées.

Nous avons vu au dessus de l'Asie, que les données CALIOP montrent :

- des pseudo dépolarisation $>12\%$ et des pseudo color ratio >0.5 pour la bande de latitude 40°N - 50°N . Ces résultats sont cohérents avec un mélange de poussières désertiques et de particules issues des émissions anthropiques pour le type (1).
- des pseudo color ratio de l'ordre de 0.3 et peu de dépolarisation, pour la bande de latitude 50°N - 60°N , indiquent un rôle des émissions de panaches de feux de biomasse en Sibérie pour le type (2).

Ces deux types de masses d'air sont aussi observées au dessus de la scandinavie pour les couches VI-A et VI-B du lidar LNG. Cela signifie, que des signatures distinctes pour les trois sources d'aérosols (feux de biomasse, émissions industrielles et désertiques), sont toujours visibles après avoir été transportées à travers l'Arctique, avec en particulier, l'influence d'un mélange de pollution asiatique et de poussières désertiques pour la couche VI-A.

Au dessus de l'Europe de l'est, on observe un mélange de poussières désertiques provenant d'Asie centrale, de particules associées au feux agricoles et des émissions anthropiques. Les données CALIOP montrent alors de la dépolarisation ($\sim 11\%$) et des grandes valeurs de pseudo color ratio (~ 0.4), indiquant une caractérisation précoce de la source des grosses particules avec moins d'élimination. Sur l'Europe de l'ouest, où les sources d'aérosols sont anthropiques, les pseudo color ratio de CALIOP sont plus faibles avec des

valeurs de l'ordre de 0.3 et peu de dépolarisation. On retrouvera ces deux types de sources européennes au dessus de la Scandinavie avec les couches II et V du lidar LNG, qui correspondent à des émissions anthropiques européennes, alors que la couche IV, constitue un mélange de poussières désertiques, d'aérosols anthropiques et d'aérosols de combustions venant des longitudes $> 30^\circ\text{E}$.

Enfin, nous avons vu que des panaches séjournant plus de 6 jours au dessus de l'Arctique, influencent aussi la troposphère scandinave à cette période de l'année (couche I et III). Ces masses d'air possèdent des valeurs intermédiaires de pseudo color ratio autour de 0.3 et présentent peu de dépolarisation. Notons que les valeurs observées, par CALIOP pour les sources anthropiques d'Amérique du nord sont plus faibles ($\text{CR}^* \sim 0.2$, $\delta_{532} \sim 0.05$). Cela traduit le rôle des émissions asiatiques dans ces panaches âgés. L'évolution temporelle des propriétés optiques de l'aérosol par CALIOP, entre les régions sources et la Scandinavie après 4-5 jours de transport au dessus de l'Arctique, suggèrent une diminution du β_{532} et des rapports de dépolarisation mais il n'est pas possible avec ces données de distinguer le rôle respectif du mélange de plusieurs sources, diluant le rôle des gros aérosols et de l'élimination des grosses particules .

Le tableau 8 récapitule les propriétés optiques des couches d'aérosols observées par CALIOP pour les 7 sources identifiées. Le rôle du transport frontal semble permettre autant le grossissement de l'aérosol que de permettre l'élimination des grosses particules.

Source	Origine	Transport Frontal	β_{532} $10^{-4}\text{km}^{-1}\text{sr}^{-1}$	CR^*	δ_{532}
Anthropique	Asie	intense	32 ± 9	0.35 ± 0.22	0.07 ± 0.07
	US	faible	15 ± 5	0.20 ± 0.30	0.05 ± 0.04
	Europe Ouest	intense	31 ± 28	0.32 ± 0.31	0.06 ± 0.06
Feux	Asie	faible	13 ± 2	0.25 ± 0.15	0.08 ± 0.07
Feux+Anthropique	Europe Est	modéré	25 ± 8	0.31 ± 0.47	0.04 ± 0.04
Poussières+Anthropique	Asie	intense	32 ± 9	0.66 ± 0.31	0.12 ± 0.17
Feux+Poussières+Anthropique	Europe Est	modéré	31 ± 44	0.39 ± 0.22	0.11 ± 0.14

TABLE 8 – Valeurs moyennes des propriétés optiques des couches d'aérosols observées par CALIOP pour les 7 études lagrangiennes en fonction de leurs origines et des sources.

Chapitre 5

Transport vers l'Arctique des émissions des feux en Russie pendant l'été 2010.

5.1 Introduction.

Les résultats du chapitre 3 ont montré l'importance des émissions en Eurasie sur la composition de la troposphère arctique. Nous avons donc décidé d'étudier les incendies ayant eu lieu en Russie pendant l'été 2010 en utilisant les observations spatiales du lidar CALIOP pour caractériser l'extension horizontale et verticale des panaches d'aérosols sur l'ensemble de la période des feux. Des simulations avec le modèle de transport FLEXPART, nous a permis de déterminer le transport de ces feux vers le nord. Les propriétés optiques des feux sont comparées aux résultats obtenus sur les feux de printemps 2008.

5.2 Contexte Météorologique.

Moscou n'a jamais connu une vague de chaleur aussi grande que pendant l'été 2010. En effet, entre le 14 Juillet et le 12 août 2010, on a relevé 30 jours consécutifs où la température a dépassé 30°C. Les anomalies de température observées en Russie entre le 20 et le 27 Juillet 2010, par rapport aux températures observées les mêmes jours, entre 2000 à 2008, sont représentées sur la carte de la figure 5.1. Ces zones chaudes, à l'est et l'ouest de la Russie, correspondent à des zones de sécheresse intense et des feux de forêt. Selon l'agence Interfax qui se base sur les données fournies par l'EMERCOM, on dénombre au 2 août en Russie près de 7 000 feux dans une zone de 500 000 ha.

Les cartes des feux MODIS détectés par les satellites Aqua et Terra pour la première semaine de juillet (Fig. 5.2(a)), pour la période comprise entre le 27 et le 2 août 2010 (Fig. 5.2(b)) montrent l'augmentation du nombre d'incendies dans la région de Moscou fin juillet et une diminution la deuxième semaine d'août (Fig.5.2(c)). Ceci est confirmé par les cartes d'épaisseur optique aérosol MODIS (Fig.5.3) qui montrent des épaisseur inférieures à 0.3 début juillet sur l'ensemble de la Russie, puis des très fortes valeurs, supérieures à 0.9, entre le 27 et le 2 août sur la zone 55°N-65°N 35°E-60°E. L'augmentation de la zone influencé par l'aérosol augmente entre le 6 et le 10 août du fait de l'aérosol de feux. Peu de valeurs élevées sont observée au-delà de 70°N et le transport semble s'effectuer vers l'est

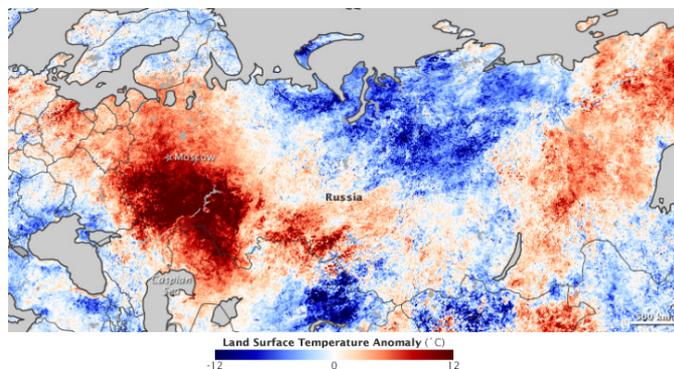


FIGURE 5.1 – Anomalie de température observé par MODIS entre le 20 et le 27 juillet 2010 sur une analyse comparative pour la même période entre 2000 et 2008. Les anomalies sont basées sur les températures de surface des terres observées par l'imageur spectroradiomètre (MODIS) du satellite Terra de la NASA. Les zones avec des températures supérieures à la moyenne apparaissent en rouge et orange, et les zones possédants des températures inférieures à la moyenne apparaissent en tons de bleu. Les océans et les lacs apparaissent en gris.

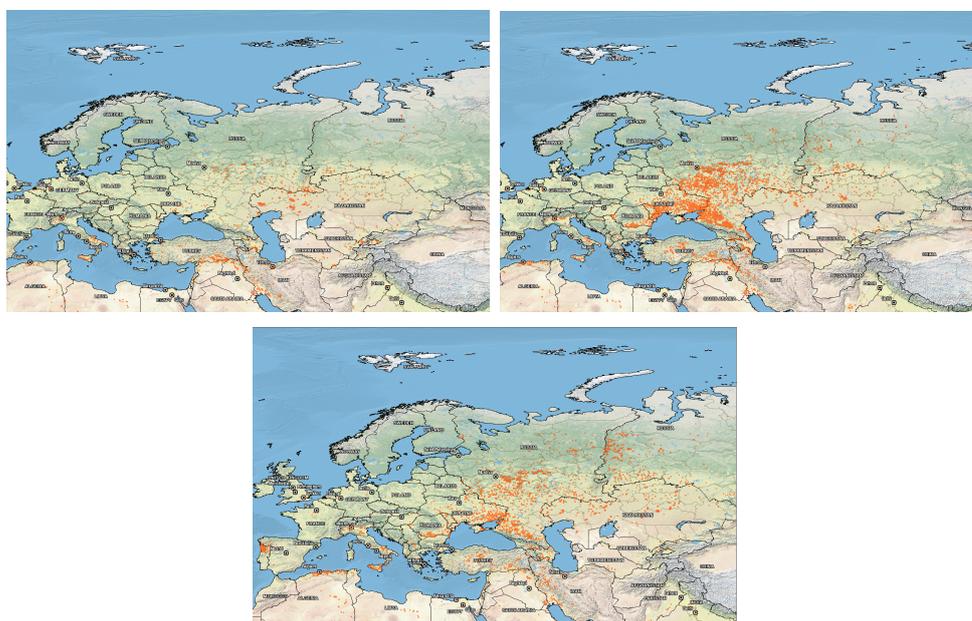
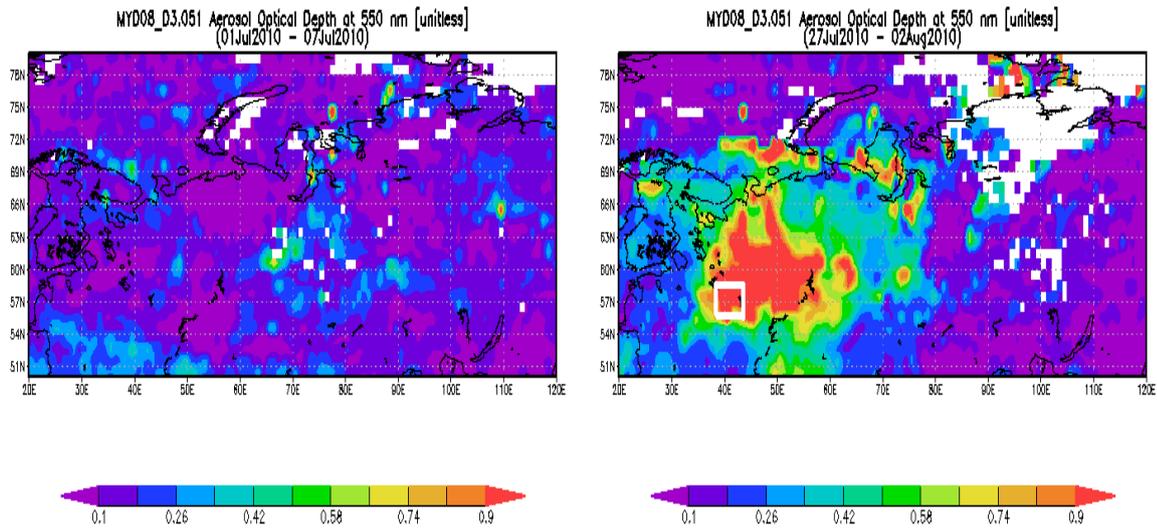


FIGURE 5.2 – Feux détectés par MODIS sur une période de 7 jours entre le 01/07/2010 et le 07/07/2010 (Fig.5.2(a)), entre le 27/07/2010 et le 02/08/2010 (Fig.5.2(b)) et entre le 06/08/2010 et le 10/08/2010 au dessus de l'Eurasie.

des zones d'incendie. Ainsi, les cartes horizontales et les coupes verticales en latitude, de température potentielle équivalente et de vent pour le 27 juillet et le 2 août 2010 (Fig.5.4 et 5.5 et Fig.5.6(a) et 5.6(b)) montrent

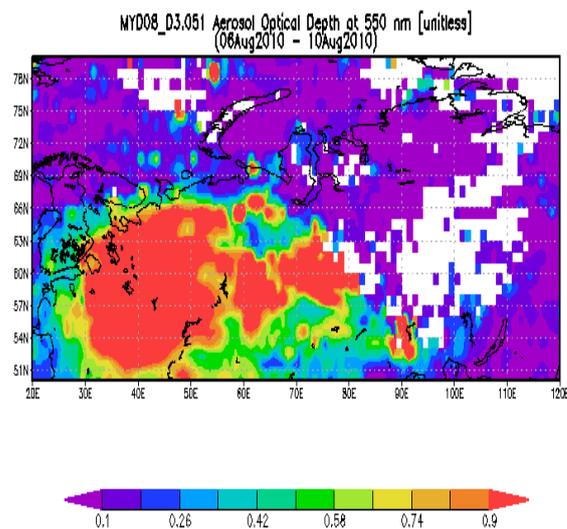
- l'enroulement anticyclonique des masses d'air autour de la zone 55°N-50°E pendant la période active et un mélange horizontal plus efficace à partir du 2 août. L'extension verticale de la zone de mélange verticale est au niveau 600hPa le 27 juillet et autour de 750 hPa le 2 août.
- la faible extension vers le nord du transport avec les masses d'air humides qui restent confinées en dessous 70°N.

Ceci explique les observations MODIS des épaisseurs optiques aérosol où les grandes valeurs se propagent vers l'est. Enfin, l'ensemble de la région connaît peu de zones d'ascendance rapide, ce qui laisse supposer un transport quasi horizontal et un impact des feux limité à la moyenne troposphère.



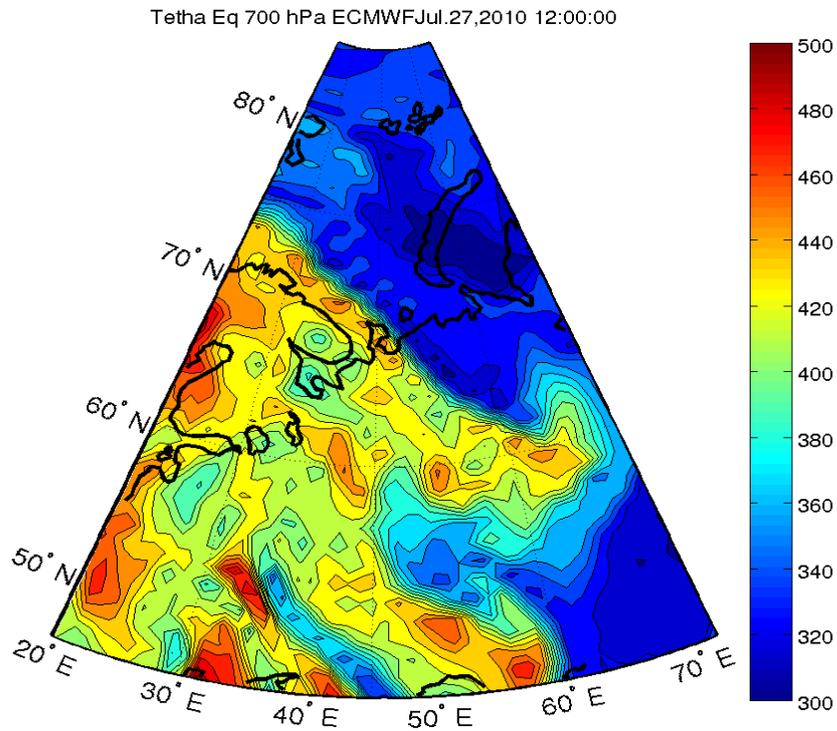
(a) 01/07-07/07

(b) 27/07-02/08

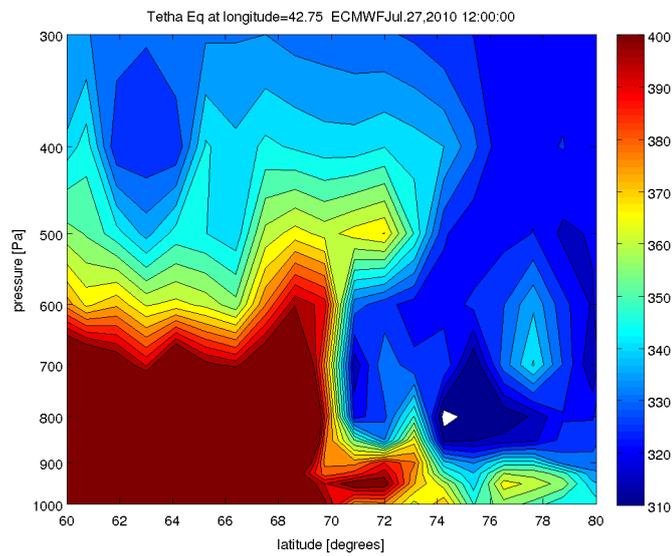


(c) 06/08-10/08

FIGURE 5.3 – Epaisseur optique aérosol vu par MODIS à 550 nm pour les périodes 01/07-07/07, 27/07-02/08 et 06/08-10/08.

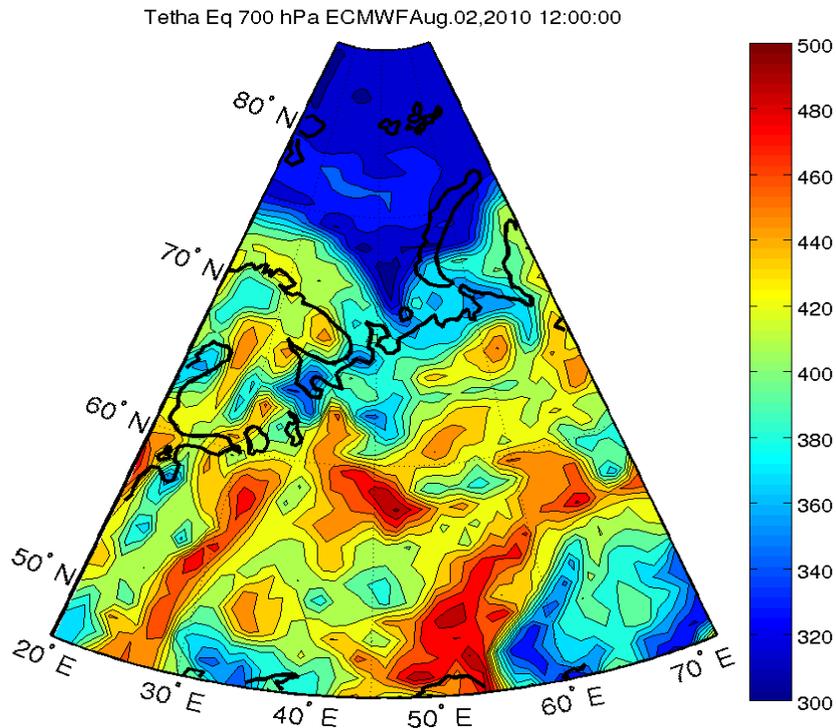


(a) θ_e 27/07/2008 12TU

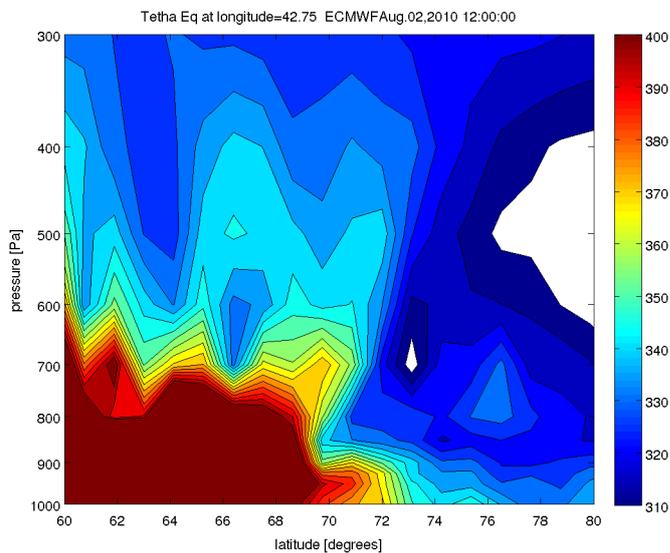


(b) coupe θ_e 27/07/2010 12 TU

FIGURE 5.4 – Carte horizontale à 700 hPa (en haut) et coupe verticale méridienne à 42 °E de température potentielle équivalente en K issue de l’CEPMMT pour le 27/07/2010 à 12TU.

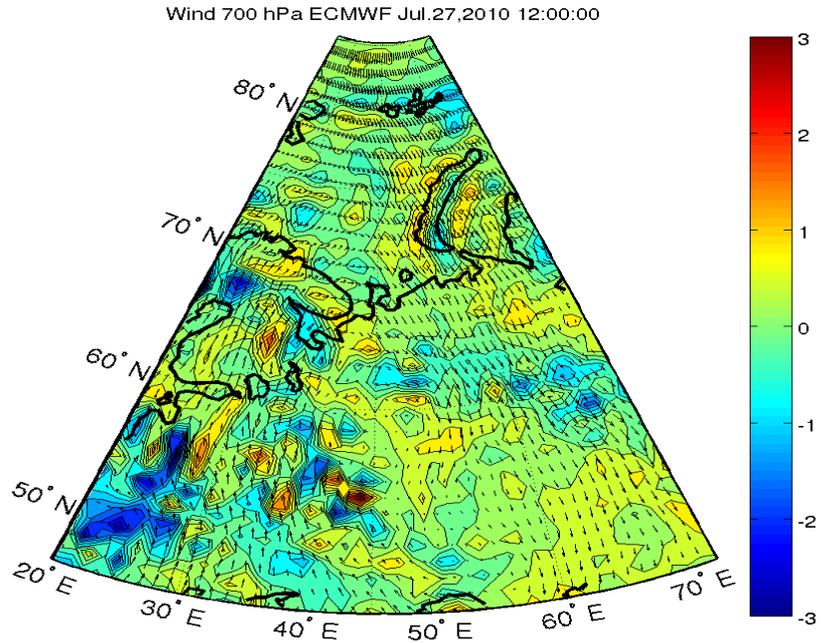


(a) θ_e 02/08/2008 12TU

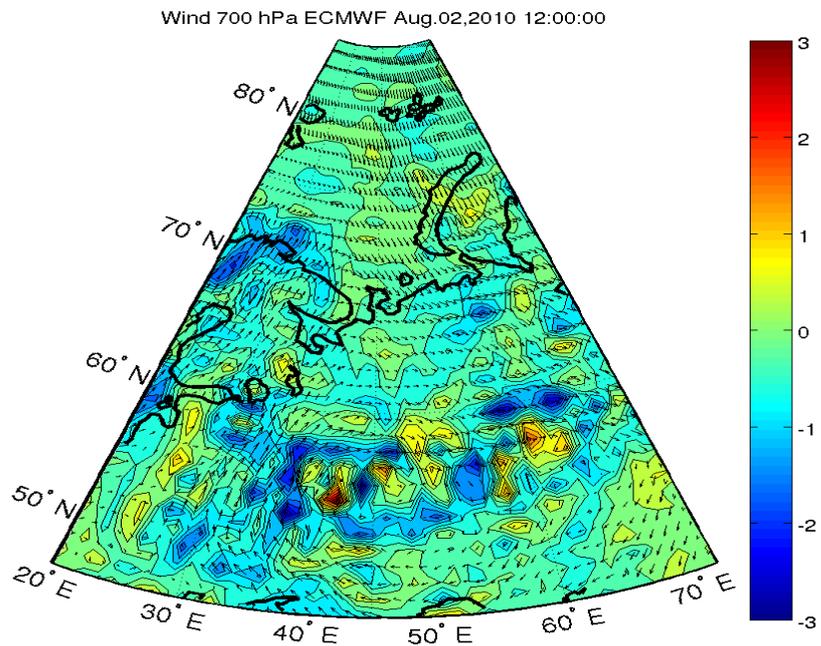


(b) coupe θ_e 02/08/2010 12 TU

FIGURE 5.5 – Carte horizontale à 700 hPa (en haut) et coupe verticale méridienne à 42 °E de température potentielle équivalente en K issue de l'CEPMMT pour le 02/08/2010 à 12TU.



(a) u+w 27/07



(b) u+w 02/08

FIGURE 5.6 – Carte des champs de vent horizontal montrés par les flèches noires et des champs de vent verticaux montrés par les contours colorés ($\text{Pa}\cdot\text{s}^{-1}$) issue de l'ECPMNT pour le 27/07/2010 et le 02/08/2010 à 12 TU.

5.3 Caractérisation des aérosols émis lors des Feux Russes de l'été 2010.

5.3.1 Caractérisation du transport des panaches de feux.

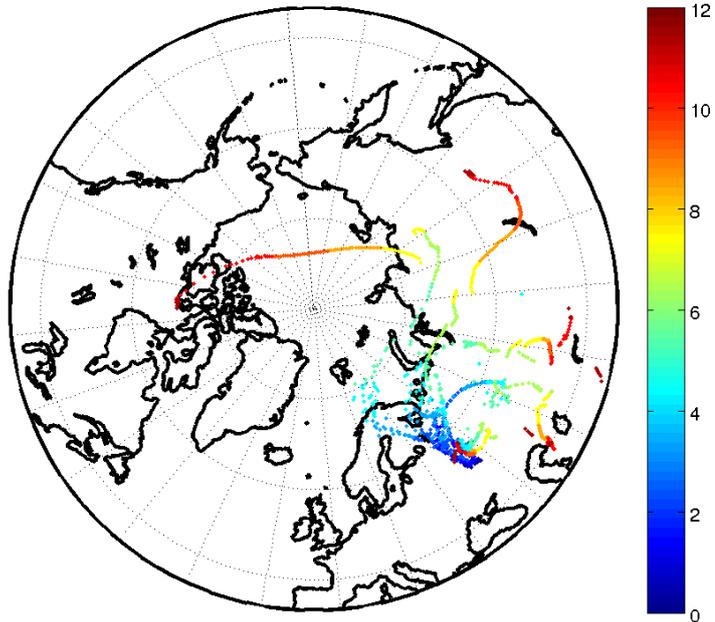
Afin de caractériser plus précisément le transport des panaches de feux suggéré par les cartes météorologiques, nous avons procédé à des simulations en mode forward de trajectoires calculées par Flexpart depuis la zone dans laquelle les feux persistent, c'est à dire dans la région 55-58°N 38-44°E. Cette zone est représentée par un rectangle blanc sur la carte d'épaisseur optique aérosol de la figure 5.3(b). On y a émis 500000 particules, entre 1000 et 5000 mètres d'altitude, sur la période du 27 au 31 juillet 2010. Les trajectoires sont calculées sur 7 jours à partir du début des simulations. Les figures 5.7 montrent les trajectoires estimées à partir des clusters de particules calculés toutes les heures entre le 27 et le 2 août, en fonction du temps (Fig.5.7(a)), de l'altitude (Fig.5.7(b)) et la fraction de particule contenue dans chaque cluster (Fig.5.8). L'analyse de ces trois figures montre : que la grande majorité des particules sont transportées les 3 premiers jours, à travers un corridor défini entre 50°N-70°N et 35°E-55°E (1er corridor de la figure 5.8), avec un soulèvement des masses d'air inférieur à 5 km. Les trajectoires confirment qu'une barrière dynamique empêche un transport effectif vers l'Arctique. En effet, les particules associées à ces émissions transportées en Arctique représentent à peine 5% après 7 jours (Fig.5.8). Vers 70°N, les trajectoires indiquent un mouvement anticyclonique qui redistribue les panaches des feux vers l'est. Ceci est cohérent avec la coupe de température potentielle équivalente indiquant un transport d'humidité confinée dans une tranche de 4 km d'altitude :

- 40% des particules se retrouvent en Asie centrale entre 40°N-70°N et 60°E-90°E en dessous de 5000 mètres (2 ème corridor sur la figure 5.8).
- 20-30% des particules, se retrouvent dans la même bande de latitude entre 90°E et 120°E et atteignent des altitudes supérieures à 5000 mètres (corridor 3 de la figure 5.8)

Nous avons alors sélectionné toutes les traces CALIPSO passant dans ces trois corridors à différentes périodes. Entre 20 et 30 traces sont disponibles dans le premier corridor le 27 et le 2 août 2010, enfin. L'étude de la période du 1-7 juillet a été ajouté pour de montrer la contribution liée spécifiquement aux feux. Ensuite, 10 à 20 traces sont disponibles, entre le 6 et le 10 août pour les deux autres corridors. Le troisième corridor présente le plus petit nombre d'orbites, à cause de la plus grande couverture nuageuse dans cette région. Le temps de transport des particules émises dans les simulations FLEXPART dans ces deux régions est donc de l'ordre de 10 jours. Le nombre de portions d'orbite, en fonction de la latitude, pris en considération pour chacun des corridors et pour les différentes périodes est montré sur la figure 5.9. On remarque que nous travaillons avec un nombre significatif (>5) d'orbites pour des tranches de latitude de 1.5°.

5.3. Caractérisation des aérosols émis lors des Feux Russes de l'été 2010.

position en fonction du temps des clusters a partir des émissions des feux russes
releases 27/07/20010-31/07/2010 52-56N et 44E
FLEXPART 27/07/2010-07/08/2010



position et altitude des clusters a partir des émissions des feux russes
releases 27/07/20010-31/07/2010 52-56N et 44E
FLEXPART 27/07/2010-07/08/2010

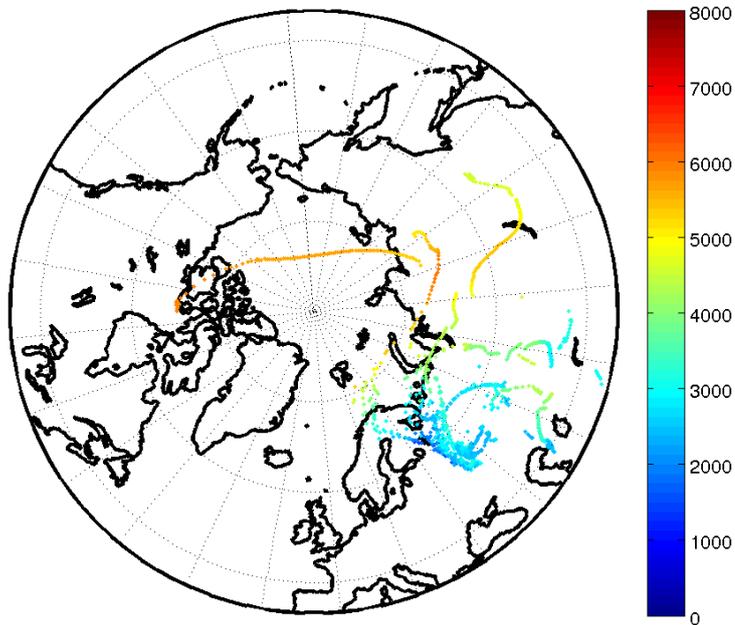


FIGURE 5.7 – Trajectoires calculées par FLEXPART entre le 27/07/10 et le 02/08/10 à partir d'une initialisation à 55-58°N 38-44°E entre 1000 et 5000 mètres de 500000 particules émises entre le 27/07 et le 31/07. Chaque point représente un cluster en fonction du temps (Fig.5.7(a)) et de l'altitude (Fig.5.7(b)).

position des clusters avec la valeur des fractions, a partir des émissions des feux russes
releases 27/07/20010-31/07/2010 52-56N et 44E
FLEXPART 27/07/2010-07/08/2010

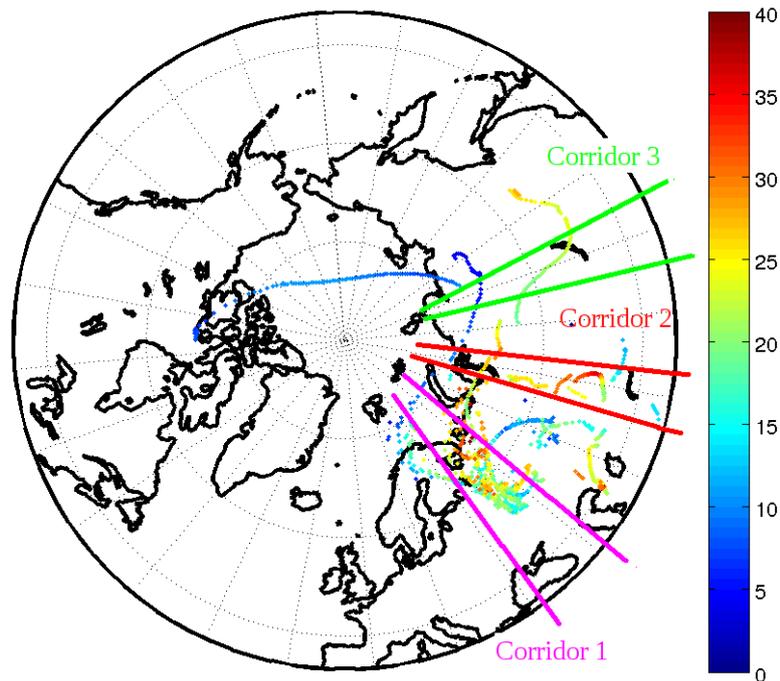


FIGURE 5.8 – Trajectoires calculées par FLEXPART entre le 27/07/10 et le 02/08/10 à partir d'une initialisation à 55-58°N 38-44°E entre 1000 et 5000 mètres de 500000 particules émises entre le 27/07 et le 31/07. Chaque point représente un cluster en fonction la fraction de particule contenue dans le cluster . Les corridors dans lesquels sont effectuées les analyses des données spatiales sont représentés par la zone entre les deux segments violet, rouge et vert.

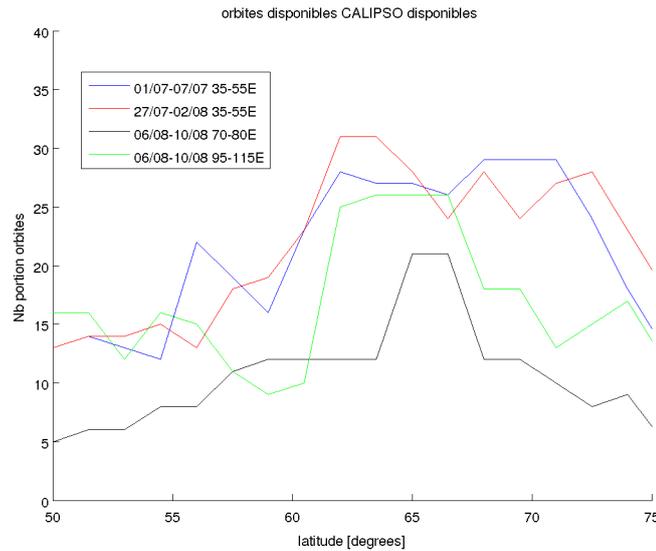


FIGURE 5.9 – Nombre d’orbites CALIPSO disponibles, en fonction de la latitude, prise en compte pour les périodes du 01/07-07/07 et 27/07-02/08 sur la bande de longitude 35°E-55°E et 06/08-10/08 pour les bandes de longitude 70°E-80°E et 95°E-115°E.

5.3.2 Propriétés optiques des panaches d’aérosols observés par CALIOP.

Analyse des observations CALIOP

Comme pour l’étude des données POLARCAT, nous analysons les données CALIOP de niveau 1 : le rapport de diffusion à 532 nm, le pseudo rapport de dépolarisation à 532 nm, et le pseudo color ratio entre 1064nm et 532nm. Les mesures lidar sont moyennées sur 1.5° en latitude et tous les 300 mètres en altitude, pour les trois corridors. De la même manière que dans le chapitre 3, nous avons vérifié que

- les rapports des (R-1) 1064 nm / (R-1) 532 nm, ne sont pas supérieurs à 16 dans les zones enrichies en aérosols
- le rapport de diffusion à 1064 nm ne dépasse pas 1.2 dans une zone propre.

Pour arriver à cela nous avons du appliquer un facteur correctif de 0.8 sur les signaux infrarouge. Par rapport à la période de mars-avril 2008, les performances du lidar CALIOP se sont dégradées, particulièrement pour le canal IR, ce qui explique une plus grande incertitude dans la procédure d’étalonnage. Les signaux sont toujours corrigés avec le masque nuage issu des produits opérationnels “nuage“ de niveau 2. La dépolarisation et le color ratio ne sont étudiés que dans les zones présentant sur l’ensemble de la période considérée, un contenu en aérosol significatif ($R_{532} > 1.3$). Notons, que dans cette étude l’épaisseur optique aérosol rencontrée pendant la période des feux est supérieure à 50%. Le color ratio aérosol, CR , peut donc être aussi discuté et comparé avec les travaux de Cattrall, 2005, qui montrent que les aérosols de combustion sont caractérisés par un CR autour de 0.6 et pas de dépolarisation.

Propriétés optiques des aérosols de feux vu par CALIOP dans le premier corridor.

Les différentes coupes méridiennes pour le 1er corridor (Fig.5.10) montrent des différences notables entre la première et la dernière semaine de juillet. En effet, au début du mois de juillet la coupe méridienne ne présente peu ou pas de signal en rapport de diffusion à 532 nm au delà de la bande de latitude 50-55°N. Les aérosols observés au sud correspondent à un signal $R \sim 2$ avec de la dépolarisation ainsi que des pseudo color ratio proche de 0.5. Les rétrotrajectoires moyennes calculées entre le 1er et le 7 juillet par Flexpart dans cette zone (Fig.5.11(a), l'initialisation se fait à partir de 500000 particules relâchées entre le 3 et 6 juillet, entre 50°N et 55° entre 1 et 4 km, dans la partie entourée en noir sur la figure 5.10 du 01/07-07/07), montrent que l'origine des masses d'air est majoritairement, d'Asie centrale avec à la fois l'influence des émissions désertiques et des émissions anthropiques de la mer noire. Ceci est cohérent avec la présence de particules dépolarisantes au sud, et à la présence d'un mélange de différents types d'aérosols dans cette région comme le montre la variabilité du CR^* entre 50°N et 55°N. Lors de l'épisode des feux, CALIOP montrent :

- une extension verticale et horizontale plus importante que pour la première semaine de juillet des signaux en rapport de diffusion à 532 nm > 1.3 . Celles-ci atteignent plus de 5 km d'altitude jusqu'à 60°N pour ensuite diminuer jusqu'à 70°N. La hauteur d'injection des panaches peut parfois être supérieure à 5 km par exemple vers 62°N où l'on retrouve du signal jusqu'à 10 km d'altitude.
- La région entre 1 et 5 km à 55°N-65°N représente la zone des feux (en violet est représenté notre zone d'émissions de particules pour nos simulations FLEXPART). Elle est caractérisée par des rapports de diffusion > 1.8 , de faible dépolarisation, des pseudo color ratio autour de 0.2-0.3 entre 3 et 5km, et de l'ordre de 0.3-0.4 dans la basse troposphère < 3 km.
- Un faible impact sur l'Arctique. En effet, les observations spatiales confirment la présence d'une barrière de transport au delà de 70°N, où les rapports de diffusion à 532 nm sont faibles même en altitude.

Ces résultats suggèrent des transformations de l'aérosol de feux dans la basse troposphère alors que les feux injectés en altitude conserve des tailles plus petites. Pour la période comprise entre le 27 juillet et le 2 août, les rétrotrajectoires calculées par FLEXPART (Fig.5.11(b),5.11(c) et 5.11(d)) dans les zones entourées en noir, sur les coupes méridiennes de droite sur la figure 5.10 qui correspondent à des signaux en rapport de diffusion supérieurs à 1.3. ceci permet de vérifier le lien direct avec la zone de feux. En effet la simulation en mode "forward" correspond à une zone très large et sur une période de cinq jours et doit alors être recoupée avec une simulation en mode "backward". Les résultats montrent que le transport associé à ces observations est bien issu de la zone d'émission.

5.3. Caractérisation des aérosols émis lors des Feux Russes de l'été 2010.

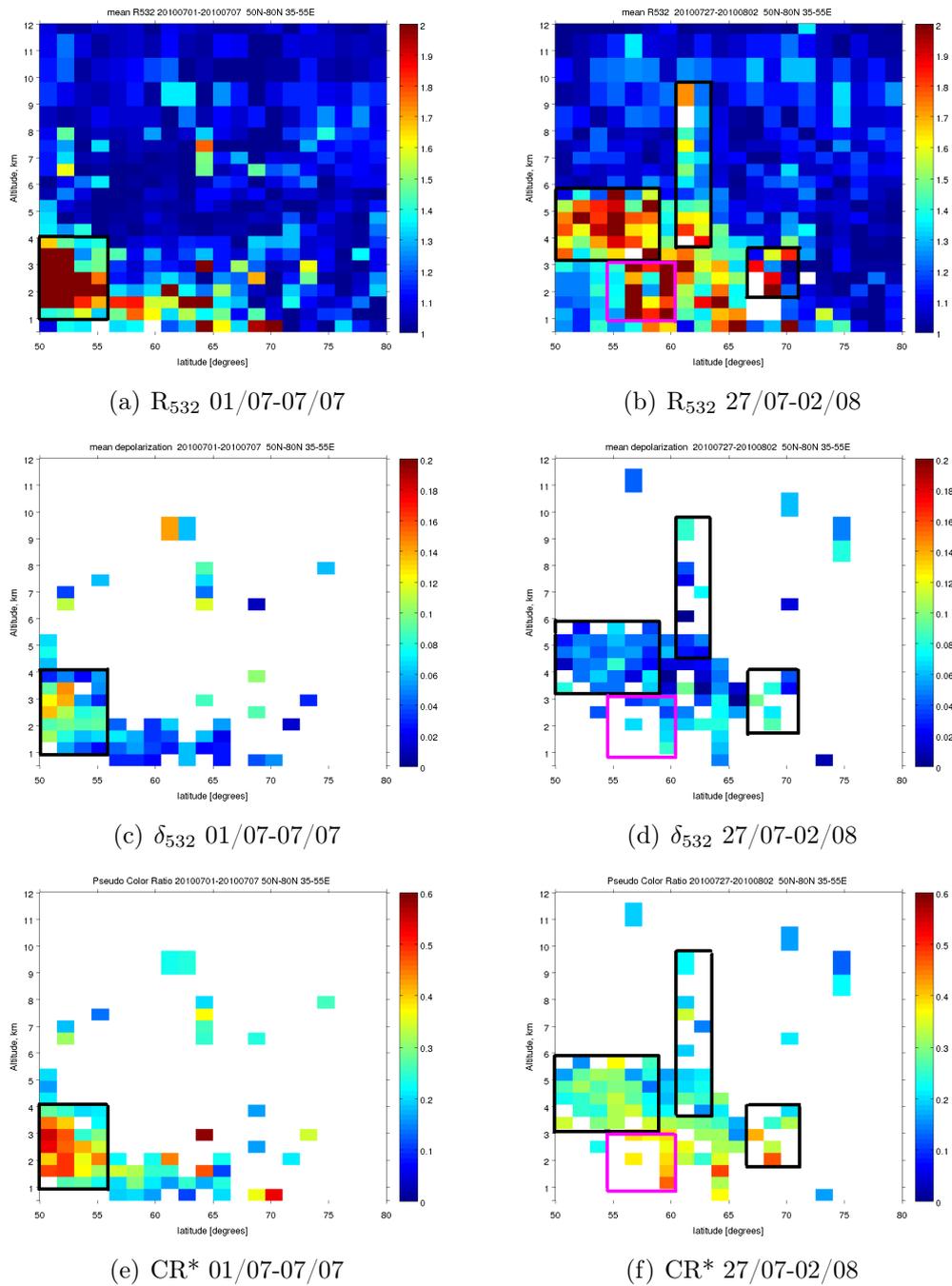


FIGURE 5.10 – Coupe méridienne (55°N - 80°N) moyen sur la bande 35°E - 55°E , des rapports de diffusion à 532 nm, δ et CR^* à partir des données Calipso niveau 1 corrigées d'un facteur 0.8 pour le canal 1064 nm pour des profils moyennés tous les 80 km puis tous les 1.5° avec l'application d'un masque nuage entre le 01/07/2010 et 07/07/2010 (colone gauche) et entre 27/07/2010 et 02/08/2010 (colone de droite). Enfin, ces profils sont moyennés en altitude tous les 300 mètres.

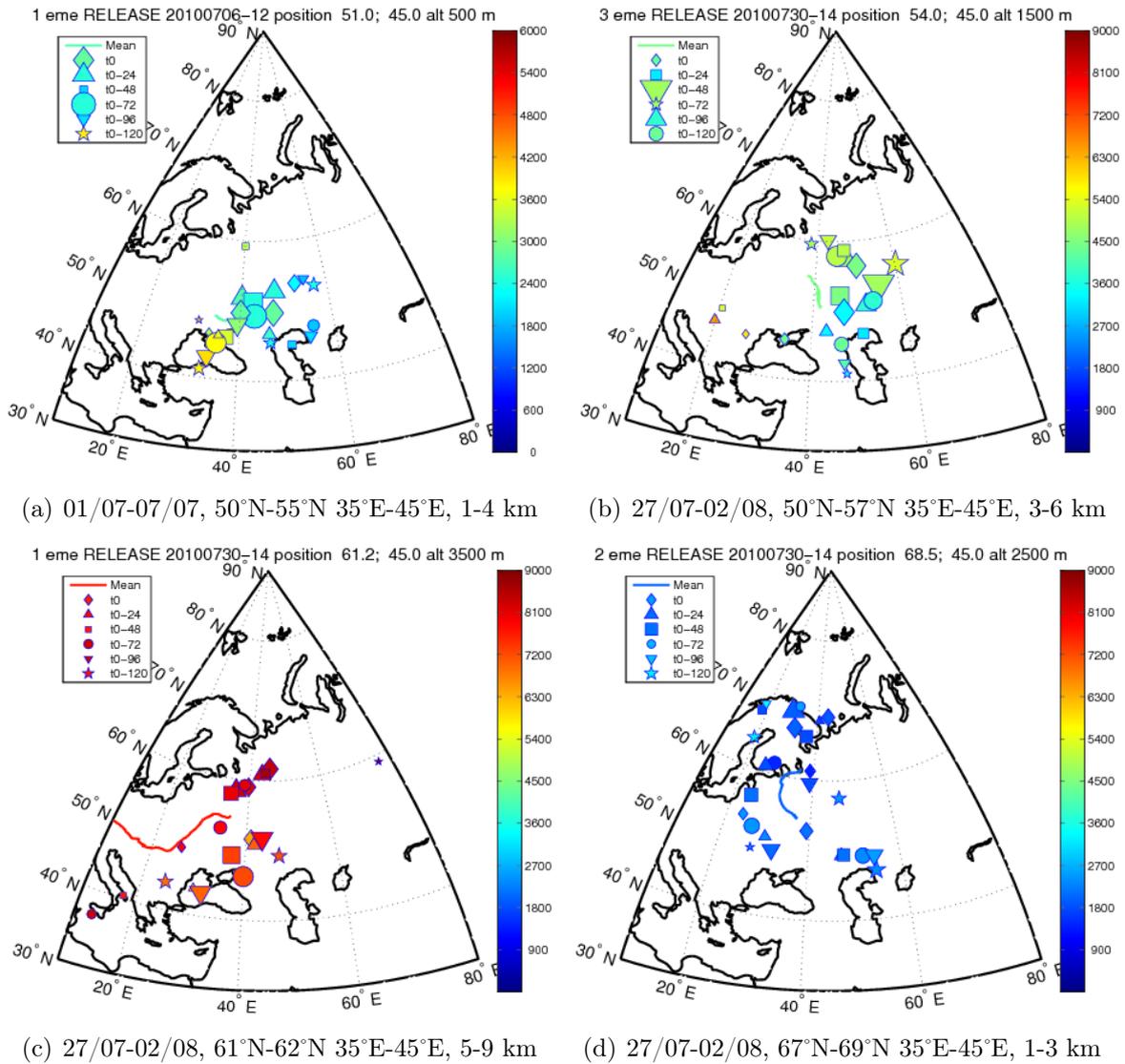


FIGURE 5.11 – Rétrotrajectoires Flexpart calculées sur 5 jours initialisées entre le 04/07 et 07/07, 50°N-53°N et 1-5km (en haut à gauche), entre le 27/07 et le 01/08, 50°N-57°N 3-6 km (en haut à droite), 61°N-62°N et 5-9 km (en bas à gauche) et 67°N 69°N 1-3 km (en bas à droite) sur la bande de longitude 35°E-45°E.

Propriétés optiques des aérosols de feux vu par CALIOP dans le deuxième et troisième corridor.

De la même manière, nous avons étudié les coupes méridiennes des trois paramètres optiques, pour le deuxième (70°E-80°E) et le troisième (95°-115°E) corridor, sur la période du 6 au 10 août. Puisque les trajectoires en mode "forward" suggèrent des masses d'air à faible altitude (< 4 km) pour le corridor 2 et au contraire dans la moyenne troposphère (> 3 km) pour le corridor 3, nous nous concentrons sur ces régions pour l'étude des aérosols détectés par CALIOP. Pour le second corridor, les propriétés optiques des couches d'aérosol montrent trois régions avec des rapports de diffusion à 532 nm supérieurs à 1.3 (celles-ci sont entourées en noir sur les coupes méridiennes de gauche de la figure 5.12) :

- entre 50°N et 53°N, 1-3 km, avec des rapports de diffusion entre 1.5 et 1.8, pas de dépolarisation (<5%), un pseudo color ratio autour de 0.2-0.3.
- entre 53°N et 59°N, 1-3 km, avec des plus forts rapport de diffusion (>2), un pseudo color ratio moyen de 0.45 et une dépolarisation autour de 10%.
- entre 63.5°N et 68.5°N, 2 et 4km, avec un rapport de diffusion de 1.6 un pseudo color ratio moyen intermédiaire de 0.35 et peu de dépolarisation (<5%).

Les rétrotrajectoires calculées par FLEXPART initialisées dans ces zones (rectangles noirs sur les coupes de la figure 5.12) confirment que les masses d'air présentent dans ces trois régions à cette période de l'année, sont influencées par la zone des feux sélectionnées (Fig.5.13). Les masses d'air présentant de la dépolarisation suggèrent un mélange avec des poussières désertiques et ceci est cohérent avec des valeurs plus élevées de pseudo color ratio. Ici, les masses d'air présentant de la dépolarisation suggèrent un mélange avec des poussières désertiques et ceci est cohérent avec des valeurs plus élevées de pseudo color ratio. Pour les couches correspondant au feux, on retrouve des caractéristiques similaires à ce que l'on a pu voir dans le premier corridor concernant les basses couches, c'est-à-dire, des pseudo color ratio de l'ordre de 0.3.

Dans le troisième corridor, sur les coupes méridiennes correspondantes de la colonne de droite (Fig.5.12), nous observons deux régions avec des rapports de diffusion à 532 nm > 1.3 au dessus de 4 km d'altitude (entourées en noir). La première, entre 53°N et 56°N, avec un rapport de diffusion moyen à 532 nm de 1.5, une faible dépolarisation (<5%) et un pseudo color ratio autour de 0.35. La deuxième région, plus au nord, entre 63°N et 66°N entre 4 et 8 km d'altitude avec des pseudo color ratio plus faibles (0.25). Nous avons ignoré les zones avec une très forte dépolarisation qui correspond probablement à un mauvais filtrage des nuages et un résidus de très grosses particules. le faible pseudo color ratio est cohérent avec ce que l'on a vu précédemment pour les panaches au dessus de 4 km connaissent moins de transformations et donc caractérisées pas des plus petites tailles. Les rétrotrajectoires de la figure 5.14 pour les zones sélectionnées montrent qu'une partie de ces masses d'air proviennent de la zone d'émission ou du nord du premier corridor.

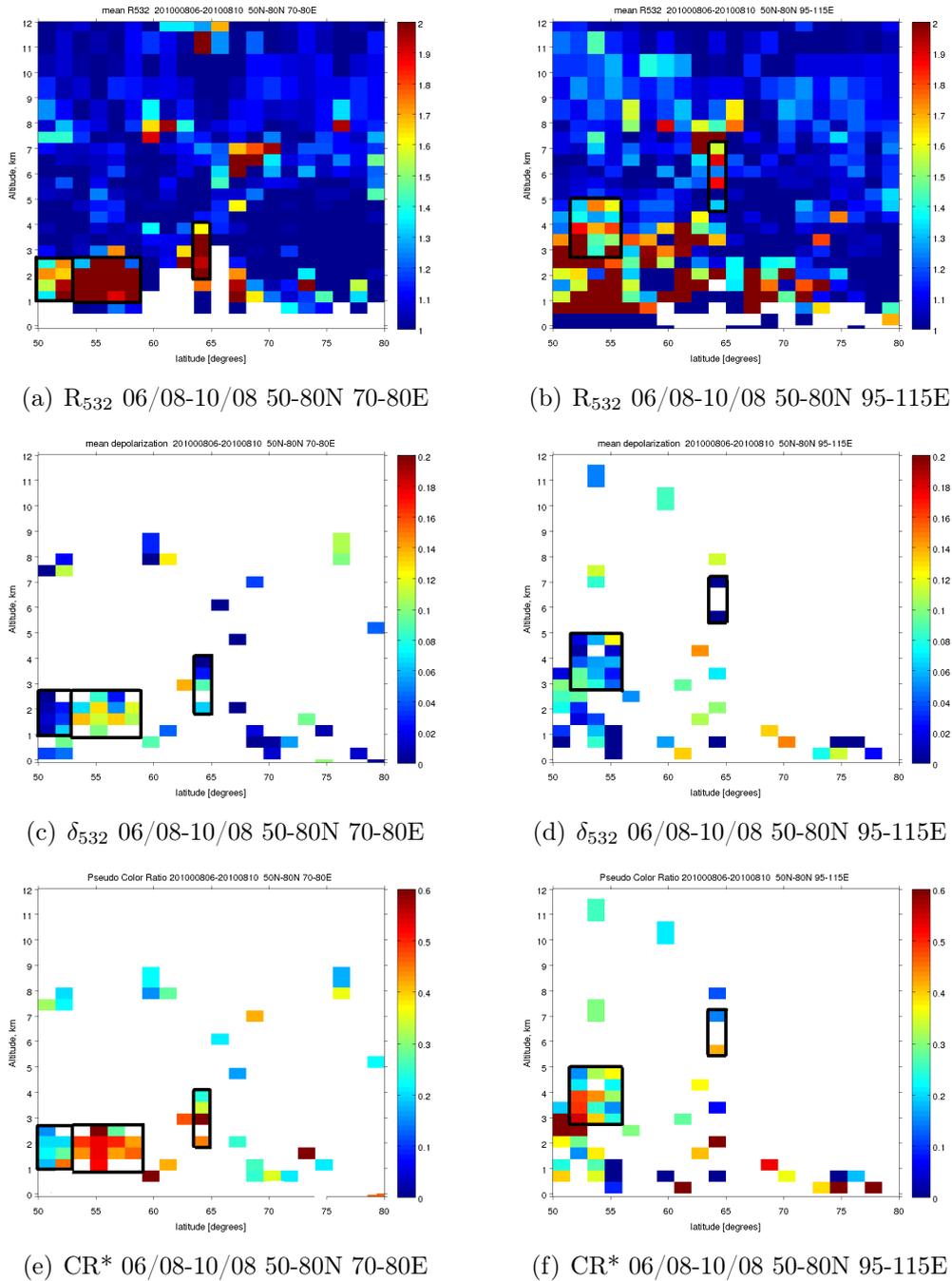


FIGURE 5.12 – Coupe méridienne (55°N-80N) des rapports de diffusion à 532 nm, δ et CR à partir des données Calipso niveau 1 corrigées d'un facteur 0.8 pour le canal 1064 nm pour des profils moyennés tous les 80 km puis tous les 1.5° avec l'application d'un masque nuage entre le 06/08/2010 et 10/08/2010 70°E-80°E (colone gauche) et 95°E-115°E (colone de droite). Enfin, ces profils sont moyennés en altitude tous les 300 mètres.

5.3. Caractérisation des aérosols émis lors des Feux Russes de l'été 2010.

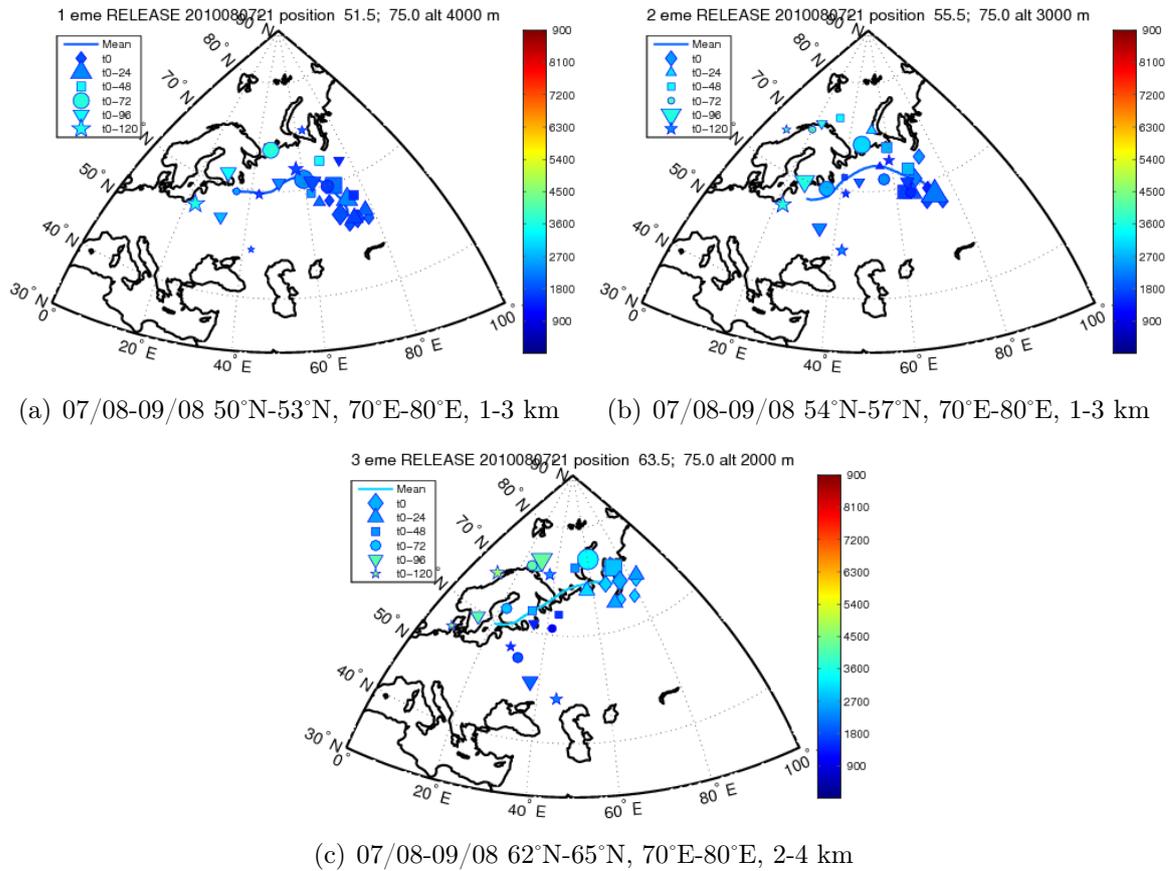


FIGURE 5.13 – Rétrotrajectoires Flexpart calculées sur 5 jours initialisées entre le 07/08 et 09/08, 50°N-53°N et 1-3km (en haut à gauche), entre 54°N-57°N et 3-6 km (en haut à droite), 62°N-67°N et 2-4 km (en bas), sur la bande de longitude 70°E-80°E.

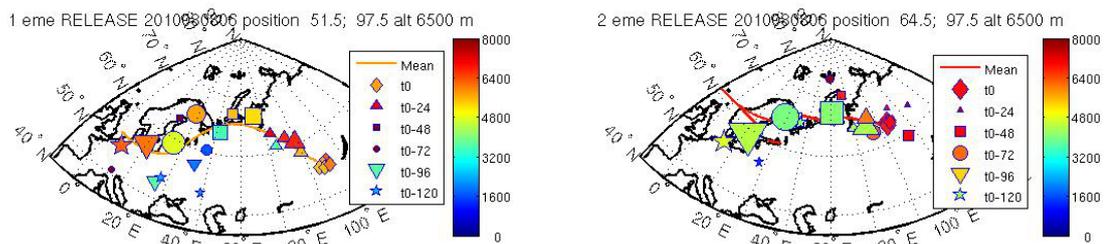


FIGURE 5.14 – Rétrotrajectoires Flexpart calculées sur 5 jours initialisées entre le 07/08 et 09/08, 50°N-53°N et 1-3km (à gauche), entre 63°N-65°N et 3-5 km (à droite) sur la bande de longitude 95°E-115°E.

Comparaison des propriétés optiques des aérosols issus des feux de printemps 2008 et de Russie 2010.

Le tableau 5.1 résume les propriétés optiques des différentes masses d'air selon le corridor d'appartenance et l'altitude que l'on vient de discuter. Les épaisseurs optiques étant importantes (>0.8), nous avons aussi restitué le color ratio aérosol, CR, pour chacune de ces couches. Pour les cinq jours suivant les émissions, les résultats suggèrent des différences sur les caractéristiques de l'aérosol selon qu'il soit injecté dans la basse ($z < 3$ km) et la moyenne troposphère. En effet, les aérosols des basses couches sont caractérisés par des $CR^* \sim 0.36$ et des $CR > 0.7$ et sont donc de plus grosses tailles que dans la moyenne troposphère ($z > 3$ km), où $CR^* \sim 0.25$ et $CR \sim 0.56$. Plusieurs jours après les émissions (> 5 jours), nous retrouvons des différences similaires entre les deux parties de la troposphère avec, néanmoins des valeurs un peu plus élevées pour ces deux paramètres optiques. ($CR^* \sim 0.35$, $CR \sim 0.75$ $z < 4$ km, $CR^* \sim 0.3$ et $CR \sim 0.6$ $z > 3$ km). Ceci suggère un grossissement et un vieillissement de l'aérosol lors du transport. Ces valeurs sont cohérentes avec les analyses effectuées dans le chapitre précédent, où l'on avait vu que les aérosols de feux détectés en altitude, lors des incendies du printemps 2008 au dessus de la Sibérie, étaient caractérisés par des CR^* de l'ordre de 0.2-0.3 une fois transportés en altitude. De plus, dans l'étude de la couche IV des analyses LNG, qui est constituée d'un mélange de poussières désertiques et de feux, nous avons constaté des $CR^* \sim 0.4$ ainsi que de la dépolarisation. Nous retrouvons ici, ces mêmes caractéristiques pour la couche détectée au sud du deuxième corridor avec un mélange d'aérosols de feux et de poussières. Enfin, nous retrouvons un bon accord avec les études de Cattrall sur les rapports de couleur aérosol qui varie entre 0.6 et 0.7. Ceci est différent de l'étude menée pendant POLARCAT où compte tenu de plus faibles épaisseurs optiques les rapports de couleur pouvaient être inférieurs à 0.5.

jours	Lat	alt (km)	δ (%)	CR^*	CR	type aerosol
01/07-07/07						
avant les feux	50°N-53°N	1-4	10	0.45	0.86	Poussière + aérosol anthropique
	54°N-57°N	1-4	6	0.32	0.75	aérosol anthropique
27/07-02/08						
Corridor 1	50°N-55°N	3-5	5	0.23	0.63	Feux
t < 5 j	55°N-65°N	3-5	3	0.23	0.50	Feux
		1-3	6	0.36	0.77	Feux
	62°N-63.5°N	7-10	8	0.27	0.6	Feux
	68°N-70°N	1-3	6	0.35	0.70	Feux
06/08-10/08						
Corridor 2	50°N-58°N	1-3	8	0.41	0.73	Poussière+Feux
t > 5 j	65°N-68°N	2-4	4	0.38	0.7	Feux
06/08-10/08						
Corridor 3	53°N-56°N	4-5	4	0.35	0.72	Feux
t > 5 j 3	53°N-56°N	4-8	4	0.24	0.54	Feux

TABLE 5.1 – Propriétés optiques des aérosols tirées des données CALIOP niveau 1 entre 50°N et 80°N, 35°E-55°E (corridor 1) entre le 27/07/2010 et le 02/08/2010 et, entre 70°E-80°E (2ème corridor) entre 95°E-115°E (3ème corridor) entre le 06/08/2010 et le 10/08/2010.

5.4 Conclusion.

Nous avons montré dans ce chapitre que les intenses épisodes d'incendie ayant eu lieu à entre de mi juillet et mi août 2010 au dessus de l'ouest de la Russie ont aussi été associés à une situation météorologique favorisant le mélange au dessous de 4 km d'altitude mais limitant l'impact en altitude et empêchant le transport au delà de 70°N. Les simulations trajectographiques FLEXPART montrent que, à la différence des feux de Sibérie qui peuvent impacter de façon significative la troposphère arctique, les incendies de Moscou vont plutôt perturber la distribution de l'aérosol en Eurasie. Les analyses CALIOP sur les zones impactées par les feux lors des deux semaines qui ont suivi les émissions, c'est à dire, entre vers 75°E et 100°E dans la bande de latitude 50° 70°N, montrent une hauteur d'injection des panaches d'aérosols de feux autour de 5 km pouvant atteindre par endroit 10 km d'altitude. On retrouve une bonne correspondance entre les trajectoires calculées par FLEXPART et les observations CALIOP, notamment sur la barrière dynamique à 70°N et l'altitude de transport. La restitution des propriétés optiques à partir des données CALIOP dans ces régions ont montré que les panaches injectés et transportés dans les basses couches subissent plus de transformations et possèdent des tailles plus importantes que ceux injectés en altitude. En effet, ces derniers sont caractérisés par des rapports de couleur de 30 à 50 % plus faibles ($CR^* \sim 0.2$) que ceux observés en basse altitude (0.3-0.4) Ceci est cohérent avec ce qui a été observé lors des analyse des panaches de feux observées par CALIOP au printemps 2008. l'âge de la masse d'air favorise également un grossissement de l'aérosol. Ceci est différent des résultats obtenus lors de POLARCAT où le transport frontal dominait et permettait aussi un lessivage des gros aérosols.

Conclusion Générale.

Les aérosols transportés vers l'Arctique pendant l'année polaire internationale de 2008 ont été étudiés lors de la campagne internationale POLARCAT. Ici nous nous sommes focalisés sur les propriétés des aérosols au printemps au nord de la Laponie, entre 67°N et 72°N. Ainsi, la campagne printemps POLARCAT-France, qui s'est déroulée du 30 mars au 11 avril 2008, a permis de réaliser 12 vols avec des conditions météorologiques qui ont permis d'étudier divers types de transport depuis les moyennes latitudes.

L'origine des aérosols observés tout le long de la campagne de mesure, a été déterminée à partir des simulations du modèle lagrangien FLEXPART à 6 jours. Celles-ci montrent des contributions de sources situées en Asie, en Europe ainsi que des masses d'air âgées ayant stagnées en Arctique. La troposphère explorée des régions <71°N, a été majoritairement influencée par des transports de secteur sud, qui correspond à la fois aux émissions européennes mais aussi à celles venant d'Ukraine (feux agricoles). Au-delà de 71°N, les régimes de transport favorisent l'influence des sources asiatiques (feux, émissions chinoises, désert). Nous avons caractérisé les panaches d'aérosols rencontrées par des mesures in situ, portant sur le spectre de taille et, d'autre part, à l'aide des mesures des paramètres optiques par le lidar aéroporté LNG :

- le rapport de diffusion à 532 et 1064 nm qui donne une information sur le pouvoir rétrodiffusant et l'épaisseur optique de la couche d'aérosol observée.
- le pseudo color ratio, CR^* : qui permet une analyse qualitative de la taille de l'aérosol observé.
- le pseudo rapport de dépolarisation à 355nm, δ , qui permet une analyse qualitative sur la présence des poussières désertiques et éventuellement de discriminer les nuages des aérosols.

Ces paramètres sont aussi étudiés avec les mesures lidar satellites CALIOP. La comparaison entre les mesures lidar et les mesures in-situ de l'avion ont permis de valider la pertinence de ces paramètres optiques. En effet, l'augmentation en taille des particules est reliée à l'augmentation du CR^* .

Une climatologie sur les propriétés de l'aérosol a été réalisée à partir de 89 couches d'aérosols pour établir les gradients méridiens, l'évolution temporelle pendant la campagne et leur dépendance avec l'origine des masses d'air. Les valeurs de CR^* sont assez faibles (0.10 et 0.25) mais augmentent vers le nord dans la basse troposphère. Ceci correspond à l'apport croissant des masses d'air asiatiques aux latitudes arctiques et implique que la fraction des grosses particules y est plus importante. Dans la moyenne troposphère, au nord, les valeurs de CR^* (~ 0.1) correspondent à de plus petites particules transportées dans la zone frontale avec probablement un lessivage des plus grosses particules.

Enfin, cette climatologie a révélée la présence de trois couches présentant de la dépolariation ($\delta > 1.9\%$) et un $CR^* > 0.14$, ce qui est caractéristique de la présence de poussières désertiques.

La comparaison avec les observations du lidar spatial CALIOP a montré une différence importante sur les valeurs absolues de CR^* , qui est dû à des différences de méthode d'étalonnage entre les deux instruments. Cette différence subsiste même après une optimisation des données CALIOP de niveau 1 en Arctique. L'incertitude sur la valeur absolue des données LNG est dominée par la normalisation dans les zones propres et nous avons estimé que le rapport de diffusion dans l'IR peut atteindre 1.2 dans ces zones propres. Néanmoins, les variations relatives des paramètres sont similaires pour les mesures aéroportés et CALIOP qui montrent :

- une augmentation relative de CR^* d'un facteur 2 entre $65^\circ N$ et $72^\circ N$ en dessous de 3 km (masses d'air asiatiques âgées),
- une diminution de CR^* avec la latitude au dessus de 3 km (transport en altitude vers l'Arctique de masses d'air européennes plus jeunes).

Pour sept couches, une étude lagrangienne a été menée avec des simulations du modèle de transport, FLEXPART, combinées aux mesures CALIOP, pour déterminer si cette approche permet de préciser plus finement la source et l'évolution des aérosol transportés en Arctique. L'analyse détaillée de l'évolution de ces sept couches, montre que l'aérosol en Arctique résulte d'un mélange de trois sources :

- des aérosols de pollution anthropique transportés du nord-est de l'Asie et d'Europe, avec des $CR^* < 0.3$ et peu de dépolariation
- des aérosols de feux de forêt en Sibérie et agricoles en Ukraine, avec des $CR^* \sim 0.3$ et peu de dépolariation.
- des poussières désertiques d'Asie Centrale caractérisées par des $CR^* > 0.4$ et $\delta > 10\%$.
En général ces aérosols sont mélangés à de la pollution anthropique d'Asie ou à des aérosols de combustion d'Europe de l'est.

Les analyses portant sur les épisodes de feux ayant eu lieu pendant l'été 2010 au dessus de la Russie permet de préciser le rôle du vieillissement sur les propriétés optiques des aérosols de feux. En effet, à cette période le lessivage par le transport frontal est faible. Les plus fortes valeurs de CR^* sont observées dans la basse troposphère, ce qui suggère des transformations plus importantes de l'aérosol lors du transport à basse altitude. Au contraire, les aérosols de feux rapidement injectés dans la moyenne troposphère, grossissent beaucoup moins vite et conservent les propriétés optiques observées dans les zones d'émissions. L'autre point important, est le faible impact sur l'Arctique de ces émissions en raison de la circulation anticyclonique qui a confiné les panaches au dessus de l'Eurasie. Une comparaison avec des modèles de transport, pourra être fait dans le futur, afin d'évaluer leurs cohérences avec ces observations.

Cette étude a aussi permis de mettre en avant le fait que les mesures satellites CALIOP permettent d'établir des climatologies pour l'étude des propriétés optiques de l'aérosol même dans les régions éloignées des sources. La quantification des biais d'étalonnage reste le facteur limitant pour améliorer les caractérisations optiques des aérosols. Compte tenu de l'importance des sources d'aérosol en Asie, il sera utile dans le futur, de disposer de mesures lidar (aéroportés ou au sol) au dessus de la Sibérie, afin de mieux caractériser les propriétés optiques de l'aérosol dans cette zone de transition où les mesures par satellites

restent à valider.

Annexe A

FLEXPART

FLEXPART est un modèle Lagrangien de Dispersion de Particule (LPD) dédié au calcul du transport d'espèces chimiques et particulaires. Le modèle représente le transport et le dépôt d'une quantité infinitésimale de petites parcelles d'air. Ainsi, l'ensemble des équations paramétrant le transport, la diffusion turbulente et le dépôt sont appliqués à chaque parcelle d'air. Le principal avantage de ce type de modèle réside dans le fait qu'il n'y a pas de diffusion numérique au contraire des modèles eulériens. En effet, dans le cas eulérien lors de l'émission d'un polluant, celui-ci est instantanément dilué dans l'ensemble de la maille dans laquelle l'émission est localisée.

Le code FLEXPART a été initialement développé par Andreas Stohl de l'Université de Munich dans les années 90. Il s'agit d'un projet sous LPG (open source) et le code est disponible sur le site internet du modèle¹. Le langage utilisé est Fortran 77 et il a été compilé avec pgf90. FLEXPART a été validé avec les données provenant d'une campagne de mesure utilisant des traceurs troposphériques [Stohl et al., 1998]. Il peut être utilisé afin d'étudier le transport intercontinental de l'ozone [Stohl et Trickl, 1999], l'advection vers l'Europe des émissions de polluants résultant de feux de forêts canadiennes [Forster et al., 2001] mais également durant des études de cas visant à étudier des intrusions stratosphériques et la dispersion des émissions d'avions dans la stratosphère. FLEXPART a aussi été testé en mode retro-plume afin de déterminer l'origine au niveau régional, de certains panaches de pollution d'origines nord américaines, transportés en Europe [Stohl et al., 2003].

A.1 Données météorologiques

FLEXPART est un modèle off-line. La version de FLEXPART utilisé dans le cadre de cette thèse accepte uniquement les données météorologiques du Centre Européen de Prévisions Météorologiques à Moyens Termes (CEPMMT). Les fichiers de données provenant du CEPMMT sont convertis au format GRIB2 (Gridded binary) afin d'être intégrés à FLEXPART. Ce format a été développé par le CEPMMT et est largement utilisé dans la gestion des données météorologiques. L'ensemble des données nécessaire au fonctionnement de FLEXPART est indiqué dans le Tableau A.1. Nous ajoutons que FLEXPART utilise, pour l'occupation des sols, les données de van de Velde et al. (1994).

TABLE A.1 – Variables météorologiques utilisées par FLEXPART

Données météorologiques	Dimension	Unité
Vitesse du vent (U, V, W)	3D	m/s
Température	3D	K
Humidité spécifique	3D	kg eau/kg d'air sec
Température du point de rosé	2D	K
Précipitation convectives	2D	kg/m ² /heure
Flux de chaleur sensible	2D	kg/m ² /heure
Vitesse de friction	2D	m/s

A.2 Architecture

Cinq fichiers d'entrées sont à configurer selon les applications désirées (Figure 3.20). Le fichier COMMAND permet d'indiquer la période sur laquelle la simulation s'étend, le fichier OUTGRID spécifie les coordonnées et la résolution du domaine modélisé, le fichier SPECIES permet de sélectionner la ou les espèces à modéliser et le fichier RELEASE permet d'indiquer la quantité de matière (kg) émise ainsi que sa durée de l'émission dans l'atmosphère en un point donné. Les coordonnées du point d'émission sont également précisées dans ce dernier fichier. Plusieurs émissions peuvent être spécifiées. Enfin, le fichier pathnames indique les chemins des données en entrée et en sortie du modèle.

A.3 Principales paramétrisations du modèle FLEXPART

Transport horizontal

les coordonnées verticales sont définies sur une grille de type terrain-following. Le maillage horizontal est uniforme et régulier. FLEXPART utilise le schéma dit «d'accélération nulle» pour le transport horizontal des particules :

$$X(t + \Delta t) = X(t) + v(X, t)\Delta t \quad (\text{A.1})$$

ce qui revient à intégrer l'équation différentielle du premier ordre suivante [Stohl, 1998] :

$$\frac{dX}{dt} = v[X(t)] \quad (\text{A.2})$$

où t est le temps (s), Δt le pas de temps, X la position du vecteur décrivant la trajectoire de la particule et $v = \bar{v} + v_t + v_m$ le vecteur vent qui est composé du vecteur vent de la maille \bar{v} , du vent turbulent v_t et du vent turbulent meso-échelle v_m .

Vent turbulent

Le vent turbulent v_{t_i} (i = composantes du vent) est paramétré pour chaque maille selon le processus de Markov basé sur l'équation de Langevin [Thomson, 1987] :

$$dv_{t_i} = a(x, v_t, t)dt + b_{i,j}(x, v_t, t) + dW_j \quad (\text{A.3})$$

où le terme de dérive (*drift*) a et le terme de diffusion b sont fonction de la position, de la vitesse turbulente et du temps. dW_j sont des composantes incrémentées du processus de Wiener avec une moyenne de 0 et une variance notée dt [Legg et Raupach., 1982].

Une diffusion Gaussienne est considérée dans FLEXPART ce qui est vérifié uniquement pour des conditions stable et neutre. Lors de forts mouvements convectifs, lorsque la turbulence est assurée pour les courants ascendants et descendants, l'hypothèse d'une diffusion Gaussienne n'est plus validée. Cependant pour le transport moyen et longue distance, les particules sont dispersées de manière homogène au sein de la CLA et l'erreur associée à l'hypothèse évoquée précédemment est minime. Selon les hypothèses mentionnées ci-dessus, l'équation de Langevin pour le vent vertical (w) peut s'écrire :

$$dw = -w \frac{dt}{\tau L_w} + \frac{\partial \sigma_w^2}{\partial z} \frac{\partial \sigma_w^2}{\rho} \frac{\partial p}{\partial z} dt + \left(\frac{2}{\tau L_w}\right)^{\frac{1}{2}} \quad (\text{A.4})$$

où w et σ_s sont respectivement la composante verticale du vent turbulent et son écart type associé. Le deuxième et le troisième terme sont la correction de dérive (*drift*) et de la densité de l'air, respectivement. Cette équation de Langevin est identique à celle décrite par [Legg et al., 1982] excepté pour l'ajout du terme de Stohl et Thomson (1999) paramétrisant la diminution de la densité de l'air avec l'altitude.

Hauteur de la CLA

La hauteur de la CLA est calculée en utilisant le nombre de Richardson (Ri) selon Vogelezang Holtslag (1996) . Le nombre de Richardson Ri est le rapport de flottabilité sur le terme de cisaillement :

$$Ri = \frac{\text{flottabilite}}{\text{cisaillement}} = \frac{\left(\frac{g}{T}\right) \overline{w'\theta'}}{\overline{u'_i u'_j \frac{\partial u_i}{\partial x_j}}} \quad (\text{A.5})$$

où $g = 9.81 m.s^{-2}$, T est la température de la parcelle d'air en (K), w la vitesse verticale en (m/s), θ est la température potentielle en (K) et u_i et u_j sont les composantes horizontales du vent (m/s). On utilise en général le nombre de Richardson de couche pour déterminer la part de la flottabilité dans l'instabilité d'une parcelle d'air. Trois cas sont alors envisagés :

- $Ri > 0$ stable
- $Ri = 0$ neutre
- $Ri < 0$ instable

Le nombre de Richardson critique est souvent employé en modélisation. Il définit la hauteur de la CLA sur un profil vertical de Ri. Dans FLEXPART, la hauteur de la CLA correspond à la hauteur de la première couche verticale dans laquelle Ri excède la valeur critique de 0,25.

convection humide Le mécanisme de transport associé aux courants ascendants dans les nuages convectifs est très important. Pour représenter le transport convectif dans un modèle de dispersion particulaire, il est nécessaire de redistribuer les particules dans une colonne verticale. Pour FLEXPART on utilise le schéma d'Emanuel et Zivkovic-Rothman (1999), qui, sur la grille des champs de température et d'humidité, calcule une matrice de déplacement qui fournit les informations de flux de masse, nécessaires à la redistribution des particules. Cette paramétrisation est déclenchée en fonction des champs de précipitation du CEPMMT.

A.4 Modélisation forward et backward

Normalement, quand FLEXPART tourne en mode forward, les particules sont libérées à partir d'une ou plusieurs sources et les concentrations sont déterminés sous le vent sur la grille. Cependant, FLEXPART peut aussi tourner en mode backward. Cette option est moins efficace que le mode forward pour le calcul de relation source-recepteur si le nombre de récepteur est plus petit que le nombre de source (potentielle). Cependant elle permet de définir la cohérence d'une approche trajectographique pour interpréter une observation en un point donné. Dans l'option backward, les particules sont libérées (RELEASE) à l'endroit des récepteurs (lieu où l'on effectue la mesure du panache dont on aimerait connaître la source). Une réponse à quatre dimensions (3 dimensions d'espace et une de temps), fonction de l'émission, est alors calculée. Dans nos modélisations trajectographiques, on se concentre uniquement sur une source (pour les simulations forward) ou un récepteur (pour les simulations backward). Les « Releases » (lâché de particules) s'effectuent sur une zone géographique déterminée par les latitudes et longitudes (tous les 0.5°) et concernent 2000 particules par niveau (tranche de 500 mètres d'épaisseur). Pour l'étude de la campagne de printemps, nous avons systématiquement effectué des mesures entre 1000 et 7500 mètres (13 tranches d'altitude de 500 mètres) le long de la trajectoire d'avion. FLEXPART nous permet de faire plusieurs lâchés simultanés sur différents niveaux sur la zone choisie. Par exemple, pour le vol v24 du 30 mars 2008, chaque point de release est représenté sur la figure A.1 le long de la trajectoire de l'avion. Ici, nous avons neuf points de release entre 67.5°N et 72.5°N sur 13 tranches d'altitudes (117 boîtes où sont relâchées dans chacune 2000 particules soit 234.000 particules au total.)

A.4.1 Trajectographie

Une fois les particules relâchées à partir des points de release décrits plus haut, Flexpart calcule la position des particules toutes les quinze minutes (mode forward ou backward). Une fois les positions calculées, nous regroupons les particules en cinq clusters en fonction de leur proximité géographique. Ainsi nous pouvons établir des (rétro)trajectoires en montrant les positions des clusters à différentes échéances temporelles. La fiabilité de

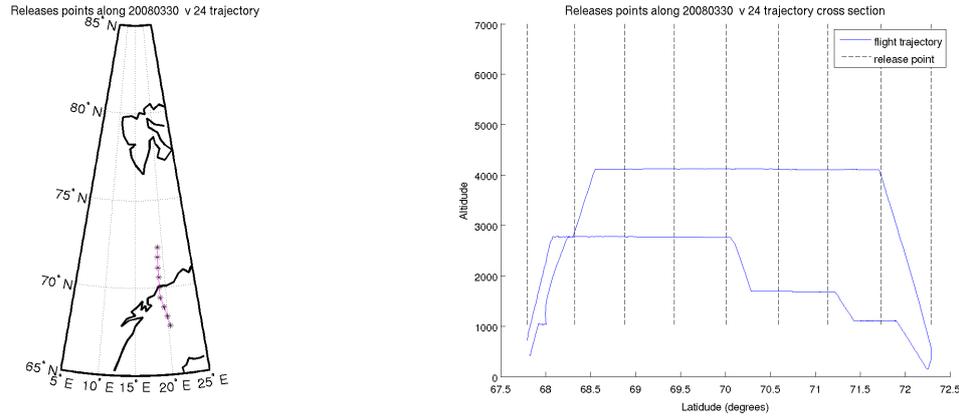


FIGURE A.1 – Point géographique (marqué d’une étoile sur la figure A.1(a) et d’un trait tireté sur la figure A.1(b)) où sont relâchées 2000 particules le long de la trajectoire d’avion, entre 1000 et 7500 mètres tous les 500 mètres, dans une zone de $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ pour le vol 24 du 30 mars 2008.

la (rétro)trajectoire est d’autant plus grande que pour une échéance temporelle donnée la distance entre les clusters est faible. Par exemple, la rétrotrajectoire effectuée à partir de la release entre 3500 et 4000 mètres à 71.7°N est montrée sur la figure A.4.1. Les clusters sont représentés toutes les 24 heures et colorés en fonction de leur altitude (échelle montrée par la barre de couleur). La trajectoire moyenne est montrée par la ligne colorée représentant l’altitude de la release.

A.4.2 Coupe fractions particules

Un autre produit utilisé à partir des simulations FLEXPART, sont les coupes de fractions de particules, afin de connaître la provenance des masses d’air observées. Ainsi, il a été ajouté au code FLEXPART une partie, permettant à chaque échéance temporelle, de calculer la fraction de particule provenant de quatre régions différentes :

- La basse troposphère européenne ($z < 3\text{km}$) définie comme les zones aux latitudes inférieures à 60°N et entre -30 et 30°E .
- La basse troposphère asiatique ($z < 3\text{km}$) définie comme les zones aux latitudes inférieures à 55°N et entre 30 et 180°E .
- La basse troposphère américaine ($z < 3\text{km}$) définie comme les zones aux latitudes inférieures à 55°N et entre -180 et -30°E .
- L’ensemble de la troposphère arctique définie comme les zones aux latitudes supérieures à 75°N .

Nous avons choisi de nous focaliser sur la basse troposphère des régions émétrices (Amérique, Europe et Asie) pour focaliser sur les différentes sources d’émissions pouvant être responsables des observations de masses d’air riches en aérosol, effectuées pendant la campagne. Pour chaque vol, nous avons réalisé des coupes verticales de fraction de particules provenant des quatre régions précédemment décrites pour différentes échéances temporelles avant les observations. Ces coupes sont discutées dans le chapitre 2.

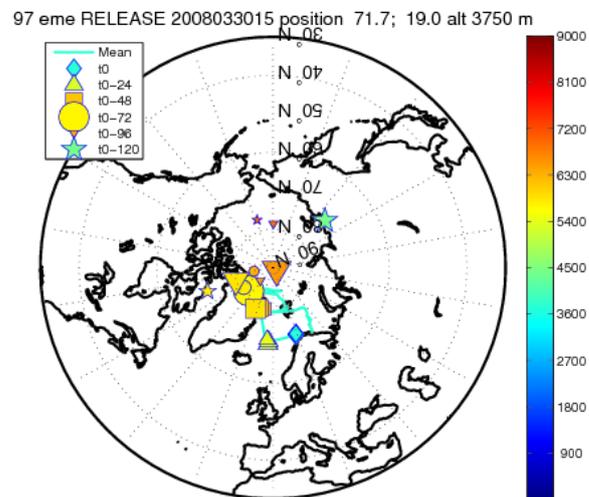


FIGURE A.2 – Rétrotrajectoires à partir des simulations FLEXPART initialisé le 30 mars 2008 à 15UT à 71.7° N 19° E entre 3500-4000m. Les clusters de particules sont représentés toutes les 24h à partir du début de la simulation. La colorbar représente l'altitude des cluster en mètres.

Annexe B

Méthode d'observations

B.1 Description générale de la technologie lidar

Le principe utilisé est voisin de celui du radar, d'où le nom de Lidar (LIght Detection And Ranging) qui s'applique à la fois à l'instrument et à la méthode de télédétection correspondante. Il s'agit d'une technique optique active de mesure à distance, par opposition aux techniques passives de télédétection d'une source de rayonnement naturel. Grâce à l'exploitation des propriétés de cohérence spatiale et temporelle spécifiques des sources laser, le lidar se différencie aussi des autres instruments de mesure à distance utilisant une source de lumière conventionnelle. Un lidar comporte toujours un émetteur et un récepteur (Fig.B.1). La source est un laser, généralement impulsionnel, émettant dans un domaine de transparence de l'atmosphère soit, typiquement, entre 0,3 et 10 μ m.

La propagation de l'impulsion laser dans l'atmosphère est suivie de la réception d'une fraction du rayonnement réémis :

- Soit par un obstacle ou une cible (lidar topographique)
- Soit par rétrodiffusion sur les constituants de l'atmosphère : molécules, aérosols, poussières (lidar atmosphérique).

Le lidar exploite les propriétés de l'interaction entre le rayonnement laser et les constituants de l'atmosphère. Les différents processus d'interaction tels que diffusion, absorption, voire fluorescence, vont conditionner les caractéristiques spectrales et d'intensité du rayonnement mesuré par le dispositif de réception (téléscope et détecteurs appropriés). Le lidar fournit ainsi des informations sur la composition et la concentration des différents constituants de l'atmosphère en fonction des processus d'interaction sélectionnés. Les trois principaux phénomènes de diffusion mis en jeu dans un lidar sont présentés dans le B.1, qui fournit l'ordre de grandeur des sections efficaces correspondantes.

Il existe principalement quatre grands types de système lidar :

- **Le lidar à rétrodiffusion** : Le lidar à rétrodiffusion est le plus ancien des lidar. Il mesure la puissance du rayonnement optique « rétrodiffusé » par l'atmosphère. Cette puissance est fonction de la réflectivité des couches atmosphériques traversées par le faisceau laser et de l'atténuation du rayonnement optique le long du trajet aller-retour. La réflectivité de l'air est elle-même fonction de la concentration en cibles rétrodiffusantes et du pouvoir réflecteur de chaque cible.

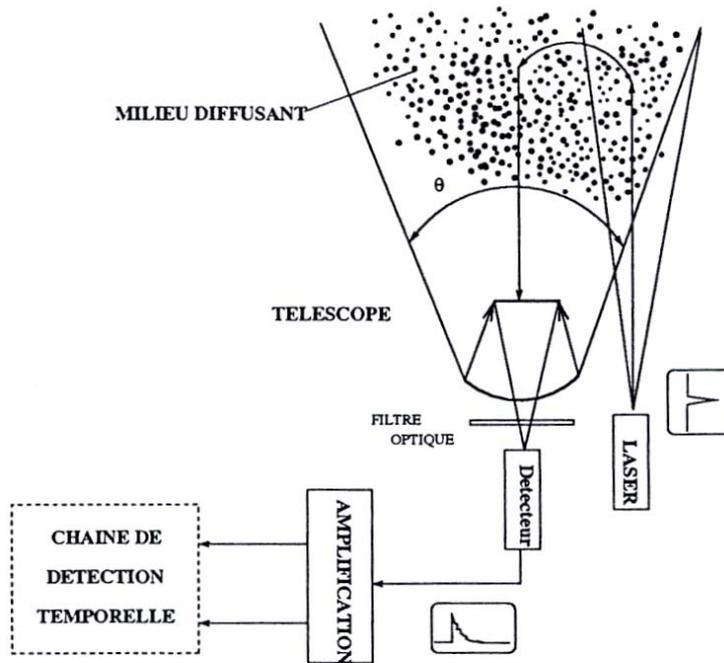


FIGURE B.1 – Principe du lidar atmosphérique

TABLE B.1 – Principaux phénomènes de diffusion dans un lidar

Processus	Caractéristiques	Section efficace de diffusion σ ($\text{cm}^2.\text{sr}^{-1}$)
Diffusion élastique :		
Rayleigh	λ réception = λ émission	10^{-10}
Mie	Particules : aérosols, poussières, atomes et molécules	10^{-26}
Fluorescence	λ réception \neq λ émission Atomes et molécules	10^{-24}
Diffusion Raman	λ réception = λ émission Molécules	10^{-29}

- **Le lidar à absorption différentielle (DIAL) :** Les premières expériences mettant en oeuvre un lidar à absorption différentielle date du début des années 80. Le lidar DIAL cible une molécule chimique particulière. Le principe est simple : deux rayonnements sont émis simultanément, ou presque, sur deux longueurs d'ondes très proches l'une de l'autre, dont l'une est absorbée par les molécules cibles et l'autre pas. A une altitude donnée, le rapport entre les puissances reçues est proportionnel à l'absorption différentielle entre les deux voies. Celle-ci est fonction de la densité des cibles et de leur pouvoir absorbant, lui-même proportionnel à la température. Il est alors possible de remonter à la densité des cibles, ou à la température si l'on choisit une molécule comme l'oxygène dont la densité est connue.
- **Le lidar Doppler :** ce lidar effectue la mesure de la vitesse du vent. Cette dernière est déterminée à partir du décalage de longueur d'onde entre les ondes émises et reçues (effet Doppler). Les lidars Doppler se sont développés à partir des années 80.
- **Le lidar Raman :** Comme les lidar Dial, les lidar Raman ciblent une particule particulière. Le principe est d'émettre dans une gamme de longueur d'onde susceptible de donner lieu à une diffusion anélastique de la part de la cible. Le rayonnement diffusé est à une longueur d'onde décalée par rapport à la longueur d'onde d'émission. Ce décalage en fréquence est alors propre à la nature de la molécule à étudier. C'est ainsi que l'on va remonter à la concentration de cette dernière. La diffusion Raman fut historiquement la première voie envisagée pour la mesure de la concentration chimique, de rapport d'humidité ou de température. Les premières expériences furent conduites à la fin des années 70. Avec l'apparition des instruments capables de fonctionner de jour comme de nuit, il présente aujourd'hui une véritable alternative au lidar DIAL.
- **Le lidar femtoseconde :** Nouveau type de lidar, basé sur un système laser produisant des impulsions ultrabrèves (100fs) et de fortes puissances (TW). En effet, lorsqu'une impulsion de très haute puissance crête est envoyée dans l'atmosphère, elle subit spatialement deux effets principaux qui se compensent : la focalisation par effet Ker (variation radiale de l'indice de réfraction non-linéaire due au profil Gaussien de l'intensité) et la diffraction. Le faisceau laser se focalise ainsi en un (ou plusieurs) filament(s) de petit diamètre (100 μm) qui par diffraction a tendance à diverger à nouveau. Ceci aboutit à un régime d'équilibre où la lumière est autoguidée sur de grandes distances. Parallèlement à cet effet de variation spatiale de l'indice de réfraction non-linéaire, la variation temporelle de la phase induit un élargissement spectral très important : il y a création d'un continuum de lumière blanche. L'écho du continuum rétrodiffusé est analysé par un spectromètre couplé à un télescope. La présence des gaz polluants est alors détectée par des bandes d'absorption dans le spectre du continuum. L'extraordinaire étendue spectrale, de l'UV à l'IR jusqu'à 5 μm , permet alors une détection à plusieurs longueurs d'ondes. Spécificité des instruments lidar utilisés dans notre étude

Les instruments de détections actives (CALIOP et LNG) utilisés dans le cadre de cette thèse sont pour l'ensemble des lidars à rétrodiffusion, spatiaux (embarqués sur le satellite CALIPSO), monostatique, utilisant une détection incohérente, et une émission laser pulsée. Le faible flux de photons reçus par le système d'observation d'un lidar spatial nécessite une configuration de détection en mode comptage. Nous ne chercherons pas à

TABLE B.2 – Résumé des techniques lidar troposphériques ayant un potentiel de profil intégré.

Technique	Quantité mesuré	Domaine d'exploration
Lidar à rétrodiffusion	Aérosol et nuages profils verticaux de couches mesure du coefficient de rétrodiffusion	Troposphère (jour et nuit)
Lidar Raman	Vapeur d'eau	Troposphère 0-5km(jour)
	Température	Troposphère (jour et nuit)
	Aérosol et nuages profils verticaux de couches mesure du coefficient de rétrodiffusion	Troposphère (jour et nuit)
	coefficient d'extinction lidar ratio	Toute la troposphère (nuit) 0-5km(jour)
Lidar DIAL	Vapeur d'eau Ozone	Troposphère (jour et nuit)
Lidar Doppler	Vitesse du vent	Couche limite (jour et nuit)

utiliser les données de ces instruments pour caractériser la composition chimique des constituants atmosphériques, mais plutôt pour caractériser leurs propriétés optiques à l'échelle globale. Nous nous limiterons donc dans la suite de ce mémoire à ce type de lidar.

B.2 Propriétés optiques des diffuseurs

Les interactions entre aérosols et rayonnements sont conditionnées par les propriétés optiques des aérosols. On les estime pour des longueurs d'onde dans l'ultraviolet, dans le visible et dans le proche infra-rouge, entre 200 et 900 nm. Ces propriétés optiques dépendent de la composition chimique, de la taille des aérosols et de leur forme, ainsi que de l'état de mélange.

Un aérosol possède une propriété optique intrasèque, son indice de réfraction m , nombre complexe ($m=n+ki$) fonction de la composition chimique, qui possède une partie réelle (n) traduisant la diffusion et une partie imaginaire (k) qui traduit l'absorption. La figure B.2 résume les mécanismes d'absorption et de diffusion entre un rayonnement incident et une particule d'aérosol.

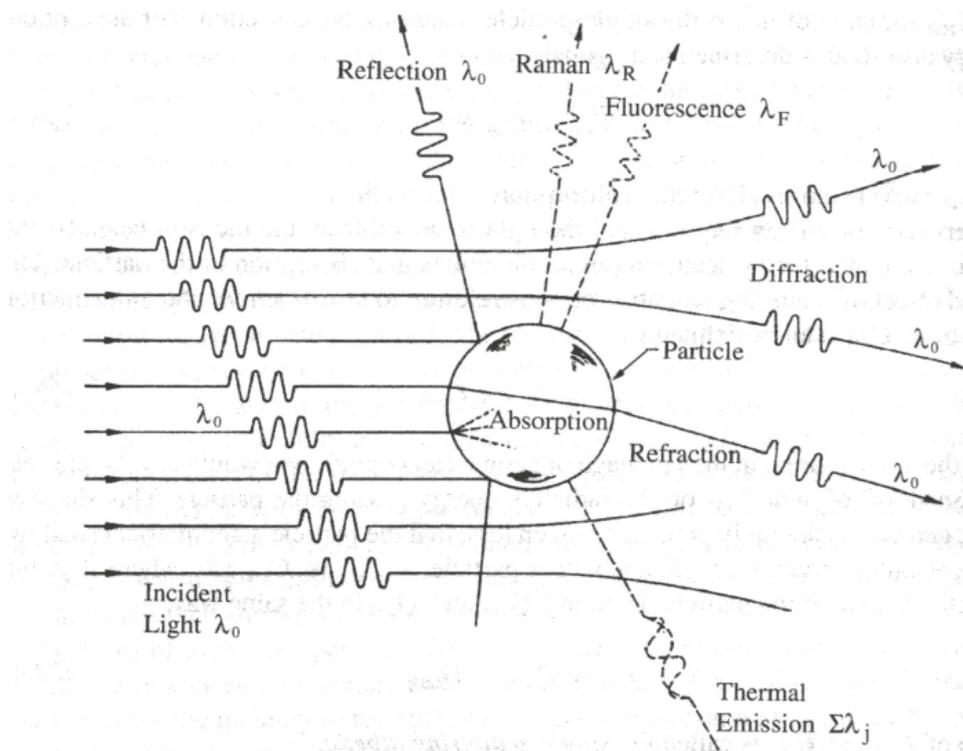


FIGURE B.2 – Mécanismes d'interaction entre le rayonnement incident et une particule [Seinfeld et Pandis, 1998].

Le tableau B.2 montre les différentes valeurs de m pour diverses espèces d'aérosols (particules sèches). Pour une particule multi-composante, les fractions volumiques de chaque

constituant chimique servent de pondérateurs dans le calcul de l'indice de réfraction de la particule [Seinfeld et Pandis, 1998].

TABLE B.3 – Indices de réfraction des principales substances atmosphériques pour une longueur d'onde, λ de 589 nm (particules sèches)

Espèce	n	k
NaCl	1.544	0
H_2SO_4	1.426	0
Carbon	1.96	0.66
BC	1.87	0.569
Sulfate d'ammonium	1.53	0
Nitrates	1.53	0
Poussières desertique	1.56	-0.66
Eau	1.34	0
Eau(glace)	1.31	

Du fait de sa taille, une particule possède aussi un paramètre de taille α , défini par le rapport :

$$\alpha = \frac{\pi \cdot d}{\lambda}. \quad (\text{B.1})$$

où d est le diamètre de la particule, λ la longueur d'onde du flux lumineux.

Pour une particule, on détermine alors l'efficacité d'extinction Q_{ext} de la particule, qui comporte une efficacité d'absorption Q_{abs} et de diffusion ("scattering"), Q_{sca} suivant la relation :

$$Q_{ext} = Q_{abs} + Q_{sca} \quad (\text{B.2})$$

Q_{ext} , Q_{abs} , Q_{sca} sont fonction de l'indice de réfraction et du paramètre de taille de la particule. Le rapport entre Q_{sca} et Q_{abs} définit l'albédo de simple diffusion de la particule, noté ω .

Q_{ext} , Q_{abs} , Q_{sca} sont déterminés :

- Soit par la théorie de Mie dans le cas $\alpha \sim 1$ ou $\alpha \gg 1$, c'est-à-dire dans le visible, pour la plupart des particules (principalement pour les particules microniques et supermicroniques),
- soit par la théorie de Rayleigh dans le cas où $\alpha \ll 1$ (cas des particules très fines) : il s'agit alors du même type d'interactions qu'entre les molécules de gaz et le rayonnement

On détermine le coefficient d'extinction (en m^{-1}) de l'aérosol par :

$$\sigma(\lambda) = \int_{D_p^{min}}^{D_p^{max}} \frac{\pi \cdot D_p^2}{4} \cdot Q_{ext}(m(\lambda), \alpha(\lambda)) \cdot n(D_p) dD_p \quad (\text{B.3})$$

D_p^{min} : diamètre minimal des particules

D_p^{max} : diamètre maximal des particules

$n(D_p)dD_p$: nombre de particules comprises entre les diamètres D_p et D_p+dD_p

En intégrant le coefficient d'extinction sur la colonne atmosphérique on obtient l'épaisseur optique τ .

B.3 Equation lidar pour un lidar à rétrodiffusion élastique

La mesure lidar à rétrodiffusion élastique part du principe que la lumière, au contact des particules de l'atmosphère, diffuse.

Dans ce paragraphe, j'exposerai les paramètres découlant des coefficients de rétrodiffusion lidar et plus précisément de la connaissance du coefficient volumique de rétrodiffusion à une longueur d'onde λ . Il est utile de distinguer les contributions moléculaires (Rayleigh) et aérosols. Ces paramètres sont utilisés dans l'analyse des propriétés optiques des aérosols observés lors de la campagne de mesure POLARCAR printemps par LNG et CALIPSO .

$$\beta_\lambda(z) = \beta_{\lambda,m}(z) + \beta_{\lambda,a}(z) \quad (\text{B.4})$$

où les indices, m et a représentent respectivement les contributions moléculaires et particulaires aux processus de rétrodiffusions. Un lidar à rétrodiffusion mesure la puissance du signal à une distance z , $P_\lambda(z)$, qui peut être relié à $\beta_\lambda(z)$. par l'équation suivante :

$$P_\lambda(z) = K_\lambda(\beta_{\lambda,m}(z) + \beta_{\lambda,a}(z)).T_{\lambda,m}(z)^2.T_{\lambda,a}(z)^2. \quad (\text{B.5})$$

- K_λ : coefficient de calibration indépendant de l'altitude propre au système lidar
- T^2 : facteur représentant la transmission optique sur le trajet aller-retour entre l'espace diffusant mesuré à l'altitude z et le récepteur du lidar.

La transmission aller-retour pour chaque constituant, x , s'écrit :

$$T_x(z)^2 = \exp(-2\tau_x(z)) = \exp(-2 \int_0^z \sigma_x(z') dz'). \quad (\text{B.6})$$

- τ_x : épaisseur optique,
- σ_x : coefficient d'extinction volumique.

Annexe C

CALIPSO

Cette partie de cette annexe est tirée des documents CALIOP Algorithm Théoretical Basis Document (ATBD, Liu et al., 2006) fournis par la NASA

2. Mission Overview

Current uncertainties in the roles played by clouds and aerosols in the Earth radiation budget limit our understanding of the climate system and the potential for global climate change [IPCC, 2001]. Aerosols can significantly impact the Earth's radiation budget through scattering and absorption of incoming sunlight. Aerosols can also impact cloud formation and radiative properties, as well as altering precipitation. In heavily polluted regions, aerosols can have deleterious health effects. Unlike greenhouse gases, tropospheric aerosols are highly variable in space and time, and satellite observations are required to understand the distribution and impact of aerosols on regional and global scales.

On the other hand, the response of Earth's climate to the radiative forcing from greenhouse gases and aerosols is largely controlled by the interactions between clouds and radiation [Cess *et al.*, 1995; Fouquart *et al.*, 1990; Slingo, 1990; Twomey, 1977; Wielicki *et al.*, 1995]. Advances in modeling capabilities to predict climate change require improved representations of cloud processes in models, and decreased uncertainties in cloud-radiation interactions. The largest source of uncertainty in estimating longwave radiative fluxes at the Earth's surface and within the atmosphere arises from current difficulties in determining the vertical distribution and overlap of multi-layer clouds.

The CALIPSO mission builds on the experience of LITE, which flew a three-wavelength lidar on the space shuttle in 1994 [Winker *et al.*, 1996]. CALIPSO enhances our current measurement capabilities with a payload consisting of a two-wavelength polarization-sensitive lidar, and two passive imagers operating in the visible and infrared spectral regions. Data from these instruments are used to measure the vertical distributions of aerosols and clouds in the atmosphere, as well as optical and physical properties of aerosols and clouds which influence the Earth's radiation budget. The CALIPSO mission provides data to address several objectives:

- to improve observationally-based estimates of direct and indirect aerosol radiative forcing,
- to improve characterization of surface longwave radiative fluxes and atmospheric heating rates, and
- to improve model parameterizations of cloud-climate feedbacks.

The overall objective is to improve the representation of aerosols and clouds in models, including climate models, weather forecast models, and air quality models.

The CALIPSO lidar, CALIOP, provides global, vertically-resolved measurements of aerosol distribution and aerosol extinction coefficients, with an ability to perform height-resolved discrimination of aerosol into several types. Unlike the current generation of space-based remote sensing instruments, CALIOP can observe aerosol over bright surfaces and beneath thin clouds as well as in clear sky conditions. Cloud data from CALIOP are incorporated into the IIR retrieval algorithm to reduce uncertainties in the retrieval of cloud emissivity and particle size.

3. Instrument and Data Acquisition Overview

This section provides a summary of the CALIOP instrument and the data acquisition process. Further details can be found in [Winker *et al.*, 2004]. CALIOP consists of a laser transmitter subsystem and a receiver subsystem. Figure 3.1 shows an exploded view of the “lidar core” contained inside the payload housing. The instrument is built around a T-shaped optical bench which assures stability of the transmitter-to-receiver alignment. The lidar receiver telescope is attached to one side of the bench with the receiver optics and detector assemblies on the other side. The laser transmitter assembly is attached to the top of the “T” by a precision linear drive mechanism and gimbal assembly, allowing precise and accurate alignment of the transmitter and receiver.

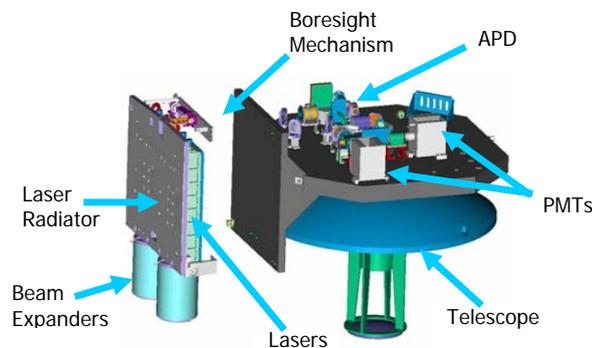


Figure 3.1. CALIOP transmitter and receiver subsystems.

3.1. Transmitter Subsystem

The laser transmitter subsystem includes two identical laser transmitters, each with a beam expander, and a beam steering system that ensures alignment between the transmitter and receiver. The Nd:YAG lasers produce simultaneous pulses at 1064 nm and 532 nm at a pulse repetition rate of 20.16 Hz. The lasers are Q-switched to provide a pulse length of about 20 nsec. Each laser generates 220 mJ of energy at 1064 nm, which is frequency-doubled to produce 110 mJ of energy at each of the two wavelengths. Polarization out-coupling provides a highly polarized output beam. Each laser is housed in its own sealed canister filled with dry air at slightly more than standard atmospheric pressure. The output pulse energy at each wavelength is measured using energy monitors located within each canister. Beam expanders reduce the angular divergence of the transmitted laser beam to produce a beam diameter of 70 meters at the Earth’s surface. Transmitter specifications are summarized in Table 3.1.

The lasers were built by Fibertek, Inc. of Herndon, VA, in collaboration with members of the CALIPSO engineering teams at Ball Aerospace and LaRC.

Table 3.1. CALIOP laser specifications

Laser	Diode-pumped Nd:YAG
Pulse Energy	110 mJ @ 532 nm 110 mJ @ 1064 nm
Rep Rate	20.16 Hz
Pulse Length	20 nsec
Linewidth	30 pm
Polarization Purity	> 1000:1 (532 nm)
Beam Divergence	100 μ rad (after beam expander)
Boresight Range	± 1 degree, 1.6 μ rad steps
Laser Environment	18 psia, dry air

3.2. Receiver Subsystem

Shown schematically in Figure 3.2, the receiver sub-system consists of the 1-meter telescope, relay optics, detectors, preamps, and line drivers, all mounted on a stable optical bench. The completed payload is shown in Figure 3.3. Signal processing and control electronics are contained in boxes mounted on the payload housing. The receiver telescope is an all-beryllium 1-meter diameter design similar to the telescope built for the GLAS instrument on the ICESat satellite [Zwally *et al.*, 2002]. The telescope primary mirror, secondary mirror, metering structure, and inner baffle are all made of beryllium, for lightness and to minimize the effect of thermal gradients. A light shade prevents direct solar illumination of the mirrors. The telescope is thermally isolated from the optical bench. A field stop at the focus of the telescope defines the receiver field of view of 130 μ rad (full angle) and also rejects stray light. A movable shutter placed downstream from the focus blocks light to allow measurements of detector dark current. The shutter mechanism also allows a pseudo-depolarizer [McGuire and Chapman, 1990] to be moved into the 532 nm beam for depolarization calibration. A polarization beamsplitter is used to separate the 532 nm parallel and perpendicular returns. A narrowband etalon is used in combination with a dielectric interference filter in the 532-nm channel to reduce the solar background illumination, while an interference filter alone provides sufficient solar rejection for the 1064 nm channel. Photomultiplier tubes (PMTs) are used for the 532 nm detectors as they provide large linear dynamic range, very low dark noise, and reasonable quantum efficiency. An avalanche photodiode (APD) is used at 1064 nm as PMT detectors have poor quantum efficiency at that wavelength. The APD has good dynamic range and quantum efficiency but the dark noise is much larger than for the PMTs. Thus the 532 nm channels are more sensitive.

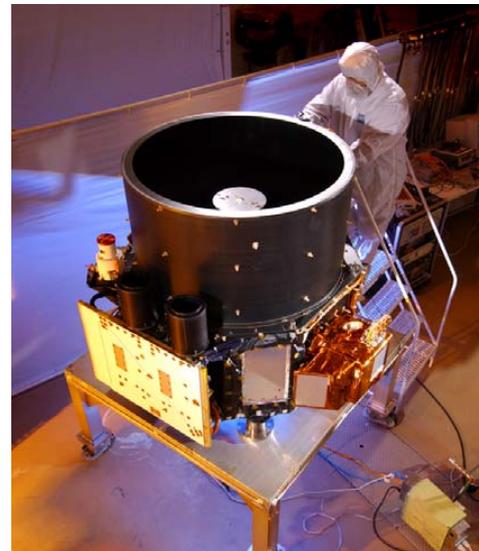
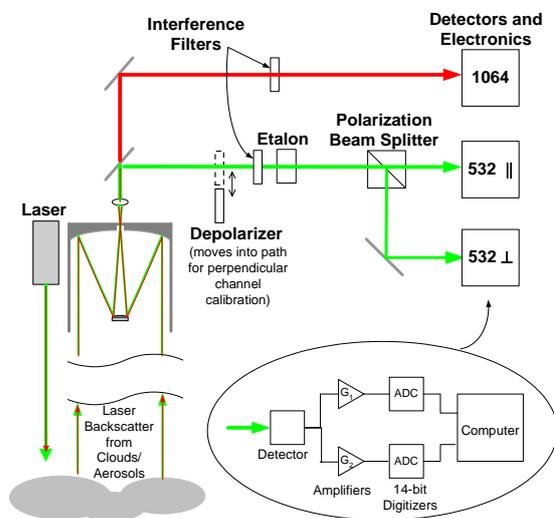


Figure 3.2. Functional block diagram of CALIOP

Figure 3.3. Completed CALIOP payload under test in BATC facilities.

CALIOP is required to accurately measure signal returns from the aerosol-free region between 30 km and 35 km as well as the strongest cloud returns. For this reason, all detectors are used in analog mode, although the electronic gains of the 532 nm channels are large enough to allow detection of single photoelectron events. The signal processing electronics have been designed so the linear dynamic range encompasses the full range of molecular, aerosol, and cloud backscattering encountered in the atmosphere, which spans about six orders of magnitude. Dual 14-bit digitizers on each channel provide the effective 22-bit dynamic range which is required. Table 3.2 lists specifications of the receiver subsystem.

Table 3.2 CALIOP receiver parameters

Telescope diameter	1 meter
Field of View	130 μ rad
Digitization Rate	10 MHz
Linear Dynamic Range	4 E+6 : 1
532 nm Channel:	
Detector	PMT
Etalon Passband	37 pm
Etalon Peak Transmission	85%
Blocking Filter	770 pm
1064 nm Channel:	
Detector	APD
Optical Passband	450 pm
Peak Transmission	84%

3.3. Data Acquisition and Signal Processing

A number of functions are performed by the instrument to convert the analog detector signals into the data which are downlinked. These include range determination, background subtraction, digitization, merging, and averaging. There are two opposing drivers on data processing: to maximize spatial resolution and dynamic range of the signal while minimizing the telemetry data volume. Several features were implemented to reduce the required telemetry bandwidth by more than an order of magnitude relative to the raw data, with minimum impact on the information content of the data.

Due to the oblateness of the Earth, the range from the circular orbit of the CALIPSO satellite to mean sea level (MSL, defined by the height of the geoid) varies by about 21 km through the orbit. The rate of change of the range to MSL is as much as 22 meters/sec. To allow on-orbit averaging of profile data while maintaining the vertical resolution of 30 meters, the data acquisition timing is adjusted to account for the changing range to the Earth's surface. The Payload Controller makes a real-time determination of the range to MSL for each laser shot using an on-board geoid model and an orbit propagator, which is updated using data from the spacecraft GPS. The data acquisition timing is then adjusted so that each profile has the same altitude registration with respect to the geoid.

Data acquisition timing is illustrated in Figure 3.4 in terms of height above MSL. A timer is started when the laser fires. When the laser pulse reaches an altitude of 115 km above MSL, the PMT detectors are gated on and the profile signals from all three channels are acquired (the APD detector has no gate and is always on). The analog profiles are sampled at 10 MHz (corresponding to a 15 m range interval) until the elapsed time corresponds to a range of 18.5 km below sea level, at which point the PMTs are gated off and the digitizers stop sampling. The samples acquired between 40 km (30 km for the 1064 nm channel) and -2 km are used to create the profile data which is downlinked. The portions of the profile above 60 km and below -11 km are used to measure DC signal levels.

During daylight measurements, the solar background signal can be as large as the clear-sky atmospheric signal. The instrument measures the DC background of each profile from the signal acquired between 112 km and 97 km, where the laser backscatter signals are negligible. This DC signal is electronically subtracted from the analog profile before digitization to allow the dynamic range of the digitizer to be used most effectively. This subtraction will result in negative-going noise excursions if the laser backscatter signal is small and these negative spikes will be clipped by the digitizers, biasing the mean signal. To avoid this, a fixed electrical offset is added, prior to digitization, to the portion of the profile below 97 km. The magnitude of this offset is accurately measured using the 1000 samples acquired between 75.3 km and 60.3 km, which are averaged and downlinked as a single value. This average of the upper background region is numerically subtracted from the profile during later processing. The 500 samples between -11 km and -18.5 km are also averaged and downlinked, providing another measure of the offset.

Two 10 MHz 14-bit analog-to-digital converters (ADCs), set for different gains, are used in each channel to provide the required 22-bit effective dynamic range. The high gain ADC is used to measure weak signals, while the low gain ADC is used to acquire those signals which saturate the high gain digitizer. A composite backscatter profile is then generated by using all samples

from the high-gain ADC that remain onscale. In those instances when a sample is saturated on the high-gain ADC, the corresponding sample from the low-gain ADC is used.

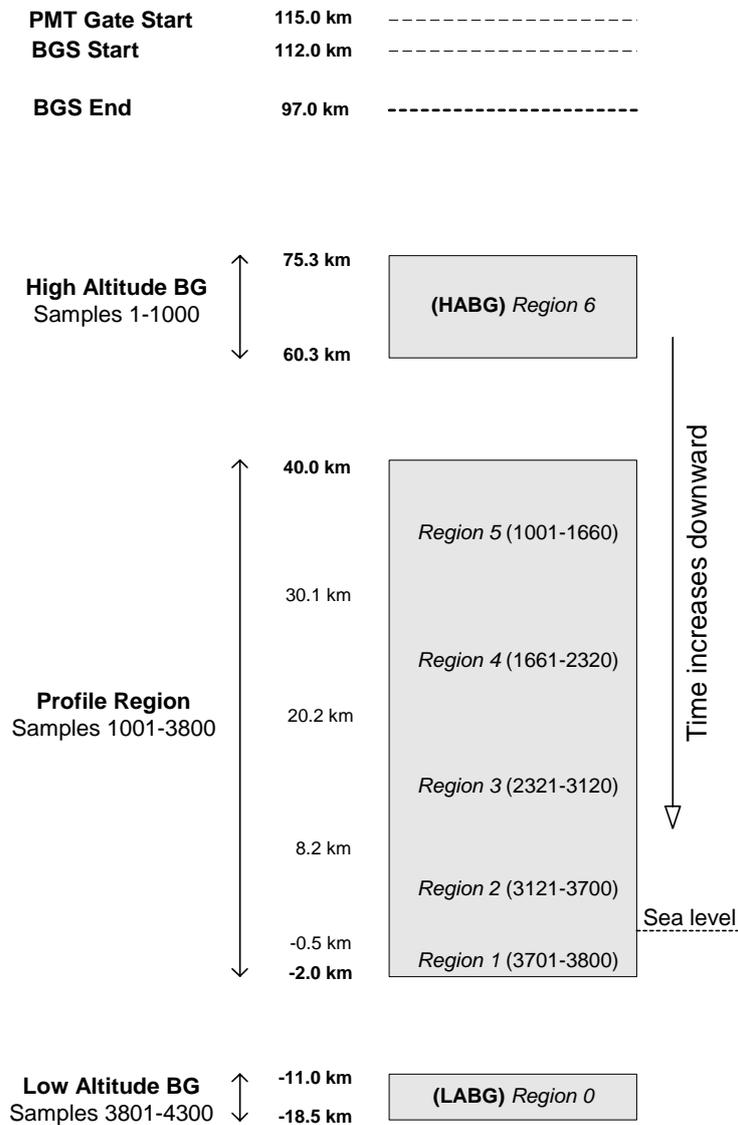


Figure 3.4

Figure 3.4 CALIPSO on-orbit data acquisition timing. Sample numbers refer to the number of 15-meter range bins

The outputs of each pair of digitizers are re-scaled and merged into a single profile before being downlinked. The fundamental sampling resolution of the lidar is 30 meters vertical and 333

meters horizontal, determined by the receiver electrical bandwidth and the laser pulse repetition rate. Therefore, each pair of adjacent 15-meter samples is averaged to produce a profile of 1400 30-meter samples extending from 40 km to -2 km. 1064 nm profiles extend only from 30 km to -2 km, as 1064 nm returns from the purely molecular atmosphere above 30 km are negligibly small.

Table 3.3 Spatial resolutions for the CALIPSO on-board averaging scheme

Altitude Region		Vertical Resolution	Horizontal Resolution	Profiles per 5-km	Samples per Profile
Base (km)	Top (km)				
40.0	30.1	300 meters	5000 meters	1	33
20.2	30.1	180 meters	1667 meters	3	55
8.2	20.2	60 meters	1000 meters	5	200
-0.5	8.2	30 meters	333 meters	15	290
-2.0	-0.5	300 meters	333 meters	15	5

The atmosphere becomes more spatially uniform with increasing altitude. Further, signals from higher in the atmosphere tend to be weaker and require more averaging. Therefore, an altitude-dependent on-board averaging scheme was developed which provides full resolution in the lower troposphere – where the spatial variability of cloud and aerosol is greatest – and lower resolution higher in the atmosphere. The degree of averaging varies with altitude, as detailed in Table 3.3 (altitudes are with respect to mean sea level).

4. Algorithm Heritage

There are number of effective methods for deriving particulate extinction and backscatter coefficients from the calibrated, range-corrected lidar signal. Among these, the most widely used are the Klett method [Klett, 1985] the Fernald method [Fernald, 1984] and the so-called linear iterative method first introduced in the late 1960s [Elterman, 1966] and subsequently used extensively by Platt [Platt, 1973; Platt *et al.*, 1998]. Klett and Fernald offer closed form, analytic solutions, while the linear iterative technique is a simple numerical solution. The Klett and Fernald algorithms were both originally developed in the context of single scattering. In later years, both algorithms were adapted for use in multiple scattering analyses using a correction factor to the range-resolved extinction coefficients (e.g., as in [Young, 1995]). The CALIPSO algorithms account for multiple scattering by applying a correction factor, derived from the phase functions of the CALIPSO aerosol models [Omar *et al.*, 2004; Omar *et al.*, 2005], to the integrated optical depth.

The majority of the CALIOP Level 2 algorithms are based on experience acquired from the Lidar In-space Technology Experiment (LITE) mission [Winker *et al.*, 1996], albeit with several significant enhancements. The CALIPSO feature-finding algorithm is driven by a profile-scanning engine originally developed for application to ground-based observations [Winker and Vaughan, 1994] and later adapted for space-based analyses using LITE data [Platt *et al.*, 1999]. The CALIOP instrument has several significant design differences from LITE, which resulted in modifications of some of the methods used in the LITE algorithms and also provided new

do this by computing the average value, \bar{R}' , of the attenuated scattering ratios over the minimum clear air region (see section 0) beneath our new feature. In this region we assume that $\bar{R}' \approx T_{feature}^2$. If $\bar{R}' \geq 1$ or $\bar{R}' \leq 0$, no change is made to the profile scanner's threshold array. However, for $0 < \bar{R}' < 1.0$ the *threshold array* is multiplied by \bar{R}' from feature base downwards to the end of the array. The profile scanning then resumes using this modified threshold array.

Due to the nature of the random noise in our signal and to occasional errant behavior by the detectors (e.g., overshoot), this last step can cause some unpleasant problems. In particular, if our estimate of T_p^2 is too low the modified threshold values will likewise be too low, which can subsequently lead to the false detection of a large number of spurious features. To guard against the possibility of this sort of unwanted behavior we use the feature integrated attenuated backscatter to develop a simple consistency check.

3.2.9.1. Feature Integrated Attenuated Backscatter

The feature integrated attenuated backscatter is defined by

$$\gamma'_{feature} = \int_{top}^{base} \beta_p(r) \cdot T_p^2(r) dr. \quad (3.11)$$

As we will see presently, $\gamma'_{feature}$ is an extraordinarily useful quantity that has application in several different aspects of feature finding. Unfortunately, we cannot retrieve accurate values of γ' until after we've completed the extinction retrieval. However, we can make reasonably good *estimates* of the feature integrated attenuated backscatter using the attenuated scattering ratios and the *clear air trapezoid* technique.

We can make an initial approximation of $\gamma'_{feature}$ by first correcting the total attenuated backscatter coefficients for the molecular and ozone transmittances, then integrating between top and base, as in equation (3.12).

$$\mathcal{G} = \int_{top}^{base} \frac{\beta'(r)}{T_m^2(r) \cdot T_{O_3}^2(r)} dr = \int_{top}^{base} \beta_p(r) \cdot T_p^2(r) dr + \int_{top}^{base} \beta_m(r) \cdot T_p^2(r) dr. \quad (3.12)$$

Alternately, the same expression can be derived using the product of the attenuated scattering ratios and the molecular backscatter coefficients, as in equation (3.13).

$$\mathcal{G} = \int_{top}^{base} R'(r) \cdot \beta_m(r) dr = \int_{top}^{base} \beta_p(r) \cdot T_p^2(r) dr + \int_{top}^{base} \beta_m(r) \cdot T_p^2(r) dr. \quad (3.13)$$

In either case, the estimate is too large due to the contributions from the feature-attenuated molecular backscatter term. To reduce the error in the estimate, we can approximate the integral on the far right side using the appropriate clear air trapezoid area. The general concept of the clear air trapezoid correction is illustrated in Figure 3.14. This figure shows a multi-featured profile of LITE attenuated scattering ratios acquired during orbit 129. The measured data is shown in green within the features and in pale gray elsewhere. The clear air trapezoids are shown as blue crosshatched regions.

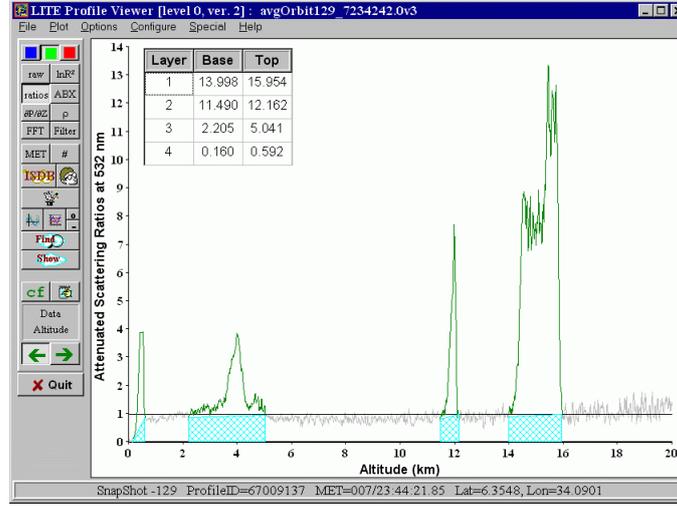


Figure 3.14: Clear Air Trapezoids

For each feature we can compute \mathcal{G} as indicated in either equation (3.12) or equation (3.13). This calculation will return the total area under the signal curve between the specified boundaries (i.e., feature base and top). To estimate the fraction of the total area contributed by molecular scattering we construct a trapezoid representing our best guess at the area of “non-feature” contributions to the signal. The base of each trapezoid extends along the $R'(z) = 0$ line. The legs of the trapezoid are located at the feature base and top altitudes and extend up perpendicular from the zero line to the signal variable values at the base and top altitudes (e.g., \mathcal{R}_{base} and \mathcal{R}_{top} , as in equation (3.14)).

Within the profile scanner, an operational estimate of $\gamma'_{feature}$ is constructed as follows:

$$\begin{aligned} \mathcal{R}_k &= \beta_m(z_k) \cdot R'(z_k) \\ \mathcal{G} &= \frac{1}{2} \cdot \sum_{k=top+1}^{base} (z_{k-1} - z_k) \cdot (\mathcal{R}_{k-1} + \mathcal{R}_k) \\ \gamma'_{feature} &= \mathcal{G} - \left(\frac{1}{2} \cdot (z_{top} - z_{base}) \cdot (\mathcal{R}_{top} + \mathcal{R}_{base}) \right) \end{aligned} \quad (3.14)$$

3.2.9.2. A Constrained Threshold Update Scheme

The equation relating $\gamma'_{feature}$ to feature optical depth (τ) and lidar ratio (S , a.k.a. extinction-to-backscatter ratio) is given by

$$\gamma'_{feature} = \left(\frac{1}{2 \cdot S} \right) \cdot (1 - \exp(-2 \cdot \tau)) = \left(\frac{1}{2 \cdot S} \right) \cdot (1 - T^2). \quad (3.15)$$

Development of (3.15) is given in two seminal papers dating from the early 1970s (Fernald et al., 1972 and Platt, 1973). During a profile scan, we can use equation (3.14) to compute $\gamma'_{feature}$ as

soon as we have located feature base. Using a *reasonable choice for S* we estimate a lower bound for $\langle R' \rangle$ using a rearranged version of equation (3.15):

$$T^2 \approx 1 - 2 \cdot \gamma'_{\text{feature}} \cdot S_{\text{reasonable}} \quad (3.16)$$

Note that generating a reasonable lower bound for $\langle R' \rangle$ requires that we be able to select an appropriate upper bound for $S_{\text{reasonable}}$.

When we begin a profile scan we assume that the two-way attenuation of the signal due to extinction by particulates is 1.00 ($\tau_p = 0 \Rightarrow T_p^2 = 1.00$). Within the profile scanning algorithm we maintain a current estimate of the particulate transmittance, \tilde{T}_p^2 , that is updated after exiting each cloud layer. For a complete profile scan, the update scheme is as follows:

Procedure 2: Threshold Update

- A. Initialize \tilde{T}_p^2 to 1.00.
Repeat the following steps until the entire profile has been scanned:
- B. Locate feature base and top altitudes and compute γ'_{feature}
- C. Compute $\langle R' \rangle$ by averaging the attenuated scattering ratios between $Z_0 = \text{base}$ and $Z_1 = \text{base} + \text{MinimumClearAirDistance}$.
- D. If $\langle R' \rangle$ is greater than \tilde{T}_p^2 or less than zero leave \tilde{T}_p^2 unchanged. No threshold update is required.
- E. If $\langle R' \rangle$ is greater than zero and less than \tilde{T}_p^2 , select $S_{\text{reasonable}}$ and compute \tilde{R} using equation (3.16); i.e., $\tilde{R} = 1 - 2 \cdot \gamma'_{\text{feature}} \cdot S_{\text{reasonable}}$
- F. Set \tilde{T}_p^2 to the LARGER of $\langle R' \rangle$ and \tilde{R} and multiply the remainder of the threshold array by the revised value of \tilde{T}_p^2 . The remainder of the threshold array is that part from $Z_0 = \text{CloudBase}$ downward to the end of the search region.

The strategy outlined above takes a conservative approach to feature finding. By restricting the maximum attenuation ascribed to any feature, we avoid the identification errors associated with an unreasonably low threshold array. However, weak features lying beneath very strong features with unusually large lidar ratios may be missed because the threshold is not allowed to drop sufficiently low. Strategies for retrieving these weaker features are considered in detail later in section 3.4.

3.2.9.3. Strategies for Selecting $S_{\text{reasonable}}$

The range of naturally occurring lidar ratios within clouds is relatively small. Recent research reports values of $S_c^{-1} \approx 0.041 \pm 0.026$ for cirrus (i.e., $S_c \approx 24$; see Sassen & Comstock, 2001 and/or Eloranta, Kuehn, & Holz, 2000), and $S_c \approx 18$ for water clouds (Pinnick et al., 1983). For either ice clouds or water clouds, an appropriate upper bound for $S_{\text{reasonable}}$ lies in the range between 30 sr and 50 sr. The range of measured lidar ratios for aerosols is much wider (from

about 10 to 100; see Anderson et. al. 2000), and the mean S_{aerosol} can be much larger ($\approx 66 \pm 16$; see Table 4.10 in Masonis, 2001). Clearly the upper bound for aerosol lidar ratio should be higher than that for clouds – say perhaps 80 sr. Furthermore, because multiple scattering cannot be neglected in the analysis of space-based lidar data, $S_{\text{reasonable}}$ must be considered as an effective lidar ratio; that is $S^* = \bar{\eta} S$, where $\bar{\eta}$ is the layer averaged multiple scattering factor such that $0 < \bar{\eta} \leq 1$.⁸ The actual values of $S_{\text{reasonable}}$ are therefore somewhat lower than the corresponding cloud or aerosol lidar ratio limits.

Since the threshold constraint is applied to prevent overestimates of feature attenuation, one possible approach is to select $S_{\text{reasonable}}$ based on a coarse estimate of feature type. For example, suppose $\gamma'_{\text{feature}} > 0.0015$ and $\chi'_{\text{feature}} < 0.6$, indicative of a robust layer of small particles. We could therefore assume that all such layers are aerosols with $\bar{\eta} \approx 0.85$, and then set $S_{\text{reasonable}} = 70$ sr. In all other cases, we would assume the feature is a cloud ($\bar{\eta} \approx 0.75$), and set $S_{\text{reasonable}}$ to 30 sr. (Note that if a feature is an aerosol of weak to moderate concentration, the actual attenuation will likely be small, and so should not be greatly different than the constrained attenuation we estimate using $S_{\text{reasonable}} = 30$.)

More sophisticated approaches are also possible. Several on-going investigations are examining the relationship between lidar ratio and the mid-cloud temperature. The current best estimate of cirrus cloud lidar ratios as a function of temperature, T , is given by

$$S_{\text{cirrus}}(T) = -1.259T - 6.698 \text{ for } -70^\circ < T < -20^\circ. \quad (3.17)$$

where T is given in degrees centigrade, and includes sign (Platt et al., 2002). However, employing this additional information in the selection of $S_{\text{reasonable}}$ requires not only a successful discrimination between clouds and aerosols, but also the ability to accurately assess cloud phase. These tasks are well beyond the scope of the feature-finding algorithm, and so until such time as a feature classification module can be incorporated, $S_{\text{reasonable}}$ is implemented as a single user-defined constant obtained from a configuration file at runtime.

3.2.9.4. Threshold Updates and the Minimum Clear Air Distance

Proper revision of the threshold level is probably the most challenging problem involved in adapting the threshold method for use with attenuated scattering ratios. Care must be taken to avoid computing the new value in regions where the signal is contaminated with aerosol, or where the profile is distorted due to (for example) an inadequate detector response time. In this respect, statistical concerns alone suggest that it is always better to use more data points rather than less. However, because we have a fixed altitude resolution, using additional data points can mean extending the minimum clear air distance to a perhaps unacceptable length.

3.2.10. Profile Scanner Flow Chart

A flowchart of the profile scanning engine discussed in this section is given below in Figure 3.15.

⁸ A complete analysis of multiple scattering effects can be found in the CALIPSO Extinction ATBD (PC-SCI-203 Part 5).

6. Computing Layer Descriptors

In this section we provide concise formulas for all of the layer descriptors that are computed by the feature finder algorithms and reported in the archived data products. Where appropriate, more detailed development is given elsewhere in this document. Note too that several of the “layer descriptors” are not scalar quantities, but instead contain an array of descriptive statistics calculated from the range-resolved backscatter data. We have defined a standard suite of statistics that consists of the minimum and maximum values within the feature, the sample mean value and standard deviation computed between feature top and feature base, and a dimensionless “skewness” parameter (Brandt, 1999). The general expressions used for computing estimates of the mean, standard deviation, centroid, and skewness are given below.

$$\text{mean: } \bar{x} = \frac{1}{N-1} \cdot \sum_{n=1}^N x_n \quad (6.1)$$

$$\text{standard deviation: } s = \sqrt{\frac{1}{N-1} \cdot \sum_{n=1}^N (x_n - \bar{x})^2} \quad (6.2)$$

$$\text{centroid: } C = \left(\frac{\sum_{n=1}^N x_n \cdot Z_n}{\sum_{n=1}^N x_n} \right) \quad (6.3)$$

$$m_3 = \frac{1}{N-1} \cdot \sum_{n=1}^N (x_n - \bar{x})^3 \quad (6.4)$$

$$\text{skewness} = \frac{m_3}{s^3}$$

The summations indicated in equations (6.1) through (6.4) are taken over all data points in between and including feature top and feature base.

6.1. Layer base and top heights

Layer base and top heights are the most basic of all layer descriptors. Base and top heights are determined SIBYL’s modification of the profile scanner (see Figure 4.16).

6.2. Renormalization region

The renormalization region is specified by the base and top altitudes of the region of “clear air” beneath a transmissive feature. For all transmissive layers SIBYL uses a search routine to determine a renormalization region. The two-way transmittance of the layer is computed in this region.

6.3. Horizontal averaging resolution

The amount of horizontal averaging that was required to detect the base and top altitudes of a given layer.

6.4. Attenuated backscatter statistics at 532 nm and 1064 nm

We characterize the feature backscatter intensity with our suite of descriptive statistics (equations (6.1) through (6.4)) from the *corrected total attenuated backscatter coefficients* at both 532 nm and 1064 nm. As shown in equation (6.5), the correction applied compensates for attenuation of the signal due to molecules and ozone. The magnitude of these effects at each range bin is computed from meteorological models.

$$\mathbf{B}_{\lambda,k} = \frac{\beta'_{\lambda}(z_k)}{T_{m,\lambda}^2(z_k) \cdot T_{O_3,\lambda}^2(z_k)} \quad (6.5)$$

6.5. Integrated attenuated backscatter at 532 nm and 1064 nm

The calculations necessary to derive layer integrated attenuated backscatter from the 532 nm attenuated scattering ratios are covered in detail in Section 3.2.9.1. The procedure outlined there is equally applicable to the 1064 nm data. Alternately, the following calculations can be used to derive layer integrated attenuated backscatter from the (total) attenuated backscatter coefficients.

$$\begin{aligned} \mathcal{G}_{\lambda} &= \frac{1}{2} \cdot \sum_{k=top+1}^{base} (z_{k-1} - z_k) \cdot (\mathbf{B}_{\lambda,k-1} + \mathbf{B}_{\lambda,k}) \\ \gamma'_{\lambda,feature} &= \mathcal{G}_{\lambda} - \left(\frac{1}{2} \cdot (z_{top} - z_{base}) \cdot (\mathbf{B}_{\lambda,top} + \mathbf{B}_{\lambda,base}) \right) \end{aligned} \quad (6.6)$$

The uncertainty in $\gamma'_{\lambda,feature}$ is derived using standard statistical techniques (e.g., as in Bevington and Robinson (1992)), and is most readily developed using the alternate formulation given in equation (6.6):

$$\Delta \mathcal{G}_{\lambda} = \sqrt{\left(\frac{z_{top} - z_{base}}{2} \right)^2 (\Delta \mathbf{B}_{\lambda,top}^2 + \Delta \mathbf{B}_{\lambda,base}^2) + \frac{1}{4} \sum_{k=top+1}^{base} (z_{k-1} - z_k)^2 (\Delta \mathbf{B}_{\lambda,k-1}^2 + \Delta \mathbf{B}_{\lambda,k}^2)}. \quad (6.7)$$

Here $\Delta \mathbf{B}_{\lambda,k}$ represents the uncertainty in the \mathbf{B}_{λ} value measured in the k^{th} range bin, where

$$\left(\frac{\Delta \mathbf{B}_{\lambda,k}}{\mathbf{B}_{\lambda,k}} \right)^2 = \left(\frac{\Delta \beta'_{\lambda}(z_k)}{\beta'_{\lambda}(z_k)} \right)^2 + \left(\frac{\Delta T_{m,\lambda}^2(z_k)}{T_{m,\lambda}^2(z_k)} \right)^2 + \left(\frac{\Delta T_{O_3,\lambda}^2(z_k)}{T_{O_3,\lambda}^2(z_k)} \right)^2. \quad (6.8)$$

6.6. Total (volume) depolarization statistics

Extinction coefficients and the associated two-way transmittances are not polarization-sensitive. Thus to obtain the total or *volume depolarization ratio profile* within a feature we simply divide the perpendicular channel attenuated backscatter coefficients by the corresponding parallel channel attenuated backscatter coefficients:

$$\delta_v(z) = \frac{\beta'_{532,\perp}(z)}{\beta'_{532,\parallel}(z)}. \quad (6.9)$$

Having computed the volume depolarization ratio profile, we can then compute the suite of descriptive statistics described above.

6.7. Layer-integrated volume depolarization

Because the depolarization ratio is the quotient of two noisy measurements, the computed quantity has a greater uncertainty than does either of the constituent parts. As a consequence, a quantity of perhaps greater utility in the scene classification algorithms is the *feature integrated depolarization ratio*, defined as follows:

$$\delta_{\text{layer}} = \left(\frac{\sum_{k=\text{top}}^{\text{base}} \beta'_{532,\perp}(z_k)}{\sum_{k=\text{top}}^{\text{base}} \beta'_{532,\parallel}(z_k)} \right). \quad (6.10)$$

The relative error in δ_{layer} is derived using standard error propagation formulas (Bevington and Robinson, 1992):

$$\frac{\Delta \delta_{\text{layer}}}{\delta_{\text{layer}}} = \sqrt{\frac{\sum_{k=\text{top}}^{\text{base}} \Delta \beta'_{532,\perp}(z_k)^2}{\left(\sum_{k=\text{top}}^{\text{base}} \beta'_{532,\perp}(z_k)\right)^2} + \frac{\sum_{k=\text{top}}^{\text{base}} \Delta \beta'_{532,\parallel}(z_k)^2}{\left(\sum_{k=\text{top}}^{\text{base}} \beta'_{532,\parallel}(z_k)\right)^2}}. \quad (6.11)$$

6.8. Attenuated total color ratio statistics

To obtain the *attenuated total color ratio profile* within a feature we divide the 1064 nm corrected attenuated backscatter coefficients by the corresponding 532 nm corrected attenuated (total) backscatter coefficients:

$$\chi'(z) = \frac{B_{1064}(z)}{B_{532}(z)}. \quad (6.12)$$

Our standard suite of descriptive color ratio statistics is then computed using profiles of $\chi'(z)$.

6.9. Integrated attenuated total color ratio

The *feature integrated attenuated total color ratio* is analogous to the feature integrated depolarization ratio, and is computed as follows:

$$\chi'_{\text{feature}} = \left(\frac{\sum_{k=\text{top}}^{\text{base}} B_{1064,k}}{\sum_{k=\text{top}}^{\text{base}} B_{532,k}} \right). \quad (6.13)$$

Annexe D

Airborne measurements of aerosol
optical properties related to early
spring transport of mid-latitude sources
into the Arctic

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.



Airborne measurements of aerosol optical properties related to early spring transport of mid-latitude sources into the Arctic

R. A. de Villiers¹, G. Ancellet¹, J. Pelon¹, B. Quennehen², A. Schwarzenboeck², J. F. Gayet², and K. S. Law¹

¹UPMC Univ. Paris 06; Université Versailles St-Quentin; CNRS/INSU, LATMOS-IPSL, France

²Laboratoire 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

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 north-eastern 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.

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.



Correspondence to: G. Ancellet
(gerard.ancellet@upmc.fr)

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 (O₃, 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 arctic 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.

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.

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.

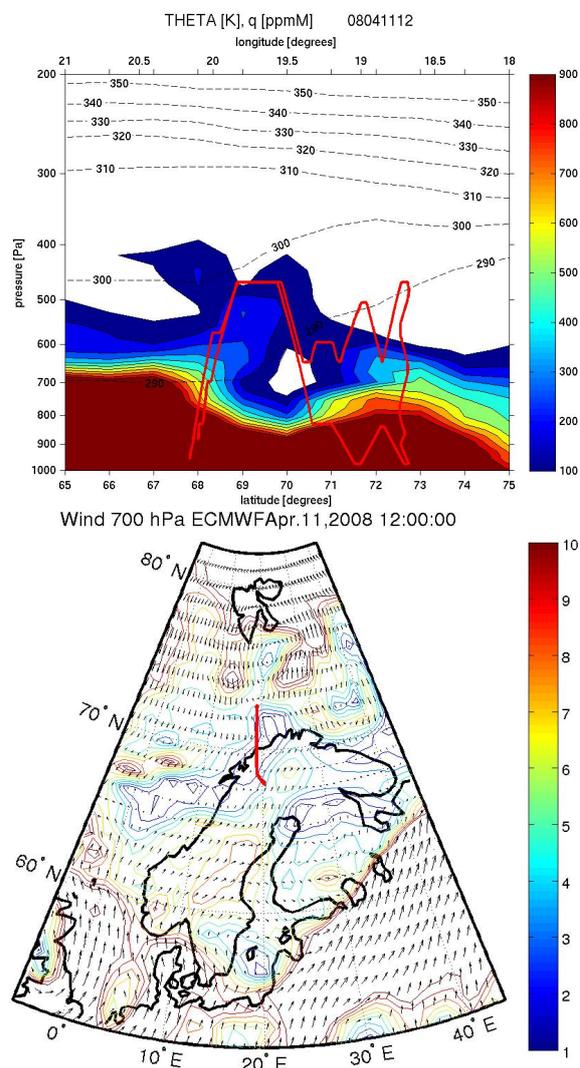


Fig. 1. Vertical cross section of ECMWF specific humidity showed by the color coded contour in ppmM, potential temperature in K showed by black dashed lines (top panel) and ECMWF wind field at 700 hPa (bottom panel) on 11/04/2008 at 12:00 UT. The colored lines show the windspeed in m s^{-1} . The flight vertical and horizontal pattern are showed in red line.

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 $1.5 \cdot 10^{-2}$ (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 require 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

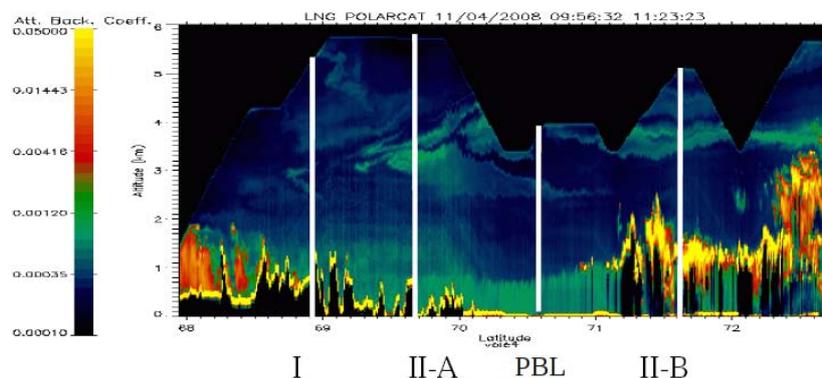


Fig. 2. Vertical cross section of the attenuated 1064 nm backscatter measured by downward looking lidar between 68° N and 72.5° N. The white vertical lines represent the four profiles, I, II-A, PBL, and II-B.

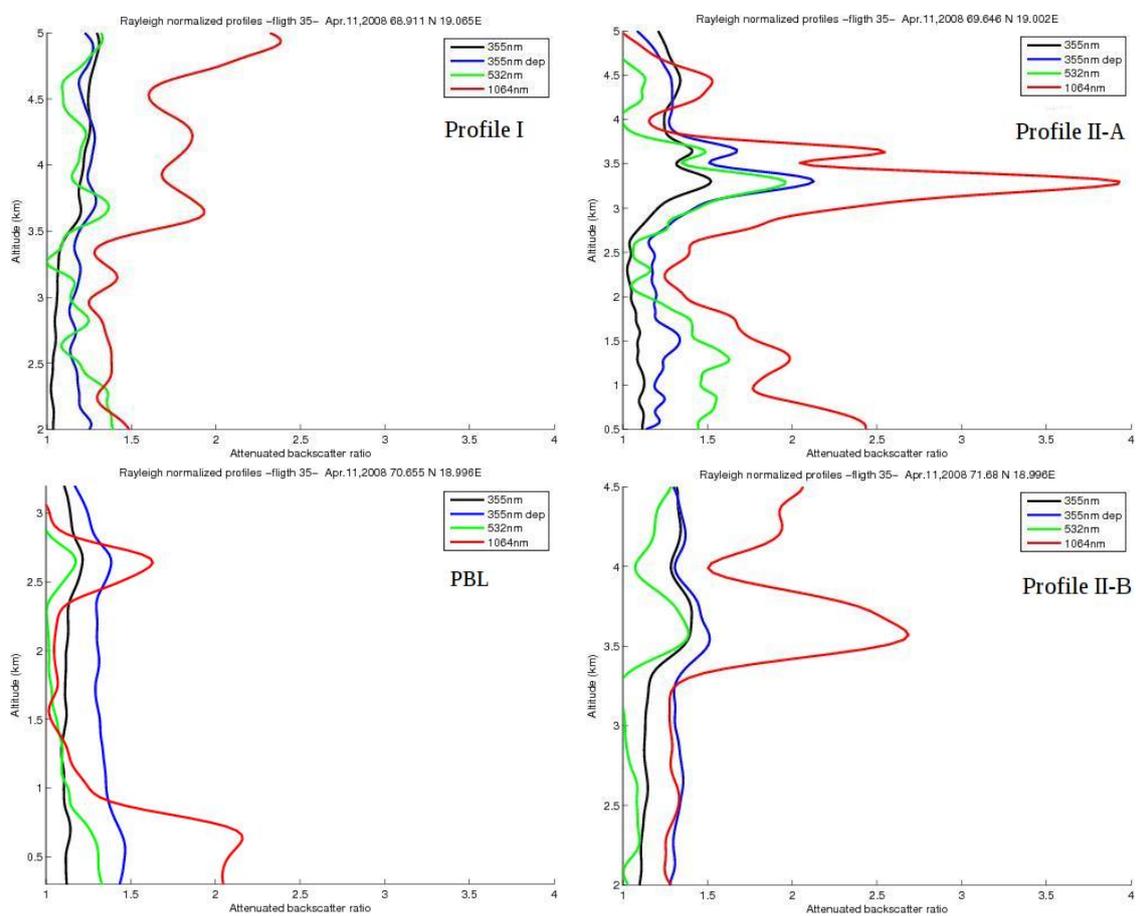


Fig. 3. Lidar vertical profiles of the 20-s averages of the attenuated backscatter ratio at 355, 355 depolarized, 532 and 1064 nm for the 4 lidar profiles listed in Table 2.

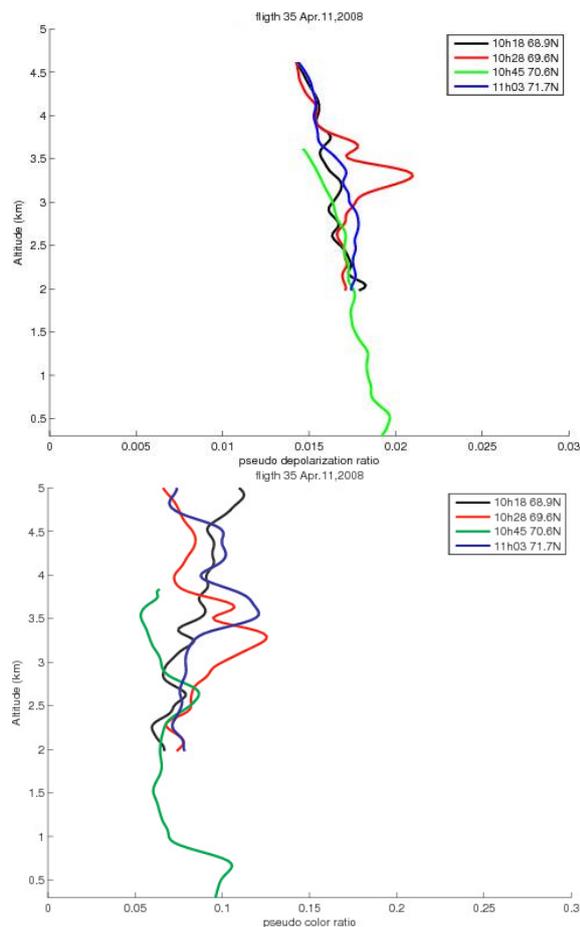


Fig. 4. Vertical profiles of the 355 nm pseudo depolarization ratio δ_{355} and the pseudo color ratio between 1064 and 532 nm for the 4 lidar profiles listed in Table 2 and showed by the white bar in Fig. 2

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 $10^{-3} \text{ km}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ and therefore a small optical depth for layer II-A ($\approx 3\text{--}4 \cdot 10^{-2}$) assuming a 532-nm lidar ratio of the order of 70 sr (Cattrell 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.

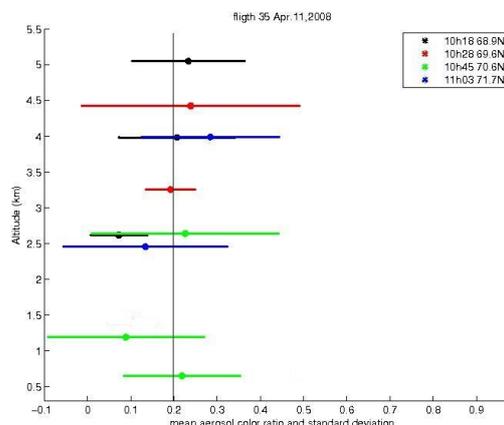


Fig. 5. Vertical profiles of the aerosol color ratio between 1064 and 532 nm and its standard deviation for the largest layers observed by the airborne lidar at 68.6° N 68.9° N 70.6° N and 71.7° N.

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 Cattrell 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

Table 2. Aerosol layer characteristics from the airborne lidar observations.

Lidar layer	Layer latitude	Altitude range, km	β_{532} $\text{km}^{-1} \text{sr}^{-1}$	Aerosol color ratio	Pseudo color ratio	Aerosol δ_{355}	Pseudo δ_{355}
I	68.9° N	3.5–4.5	$1.2 \pm 0.1 \cdot 10^{-3}$	0.21 ± 0.14	$8.5 \pm 1.8 \cdot 10^{-2}$	$2.1 \pm 1.8\%$	$1.6 \pm 0.3\%$
II-A	69.6° N	2.8–3.8	$2.2 \pm 0.2 \cdot 10^{-3}$	0.19 ± 0.03	$12.5 \pm 1.3 \cdot 10^{-2}$	$3.3 \pm 0.9\%$	$2.1 \pm 0.3\%$
PBL	70.6° N	<0.8	$1.8 \pm 0.2 \cdot 10^{-3}$	0.24 ± 0.12	$10.4 \pm 1.7 \cdot 10^{-2}$	$5.4 \pm 5.3\%$	$1.9 \pm 0.3\%$
II-B	71.7° N	3.5–4.5	$1.3 \pm 0.1 \cdot 10^{-3}$	0.20 ± 0.06	$11 \pm 1.6 \cdot 10^{-2}$	$2.1 \pm 1\%$	$1.6 \pm 0.2\%$

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 ($1\text{--}2 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \text{ sr}^{-1}$), 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 summarize, 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 ($<100 \text{ nm}$) 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 Arctic 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).

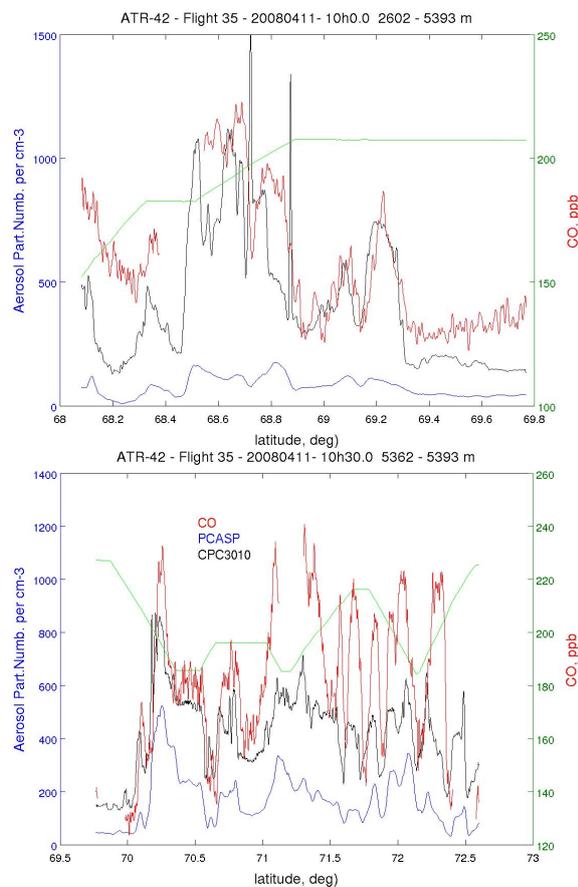


Fig. 6. CO (red) and aerosol concentrations for the PCASP (blue) and CPC (black) along the flight track for latitudes $<70^\circ$ N (top panel) and latitudes $>70^\circ$ N (bottom panel). Aircraft altitude divided by a factor 5 (green) is plotted in m using the left vertical axis.

It shows indeed smaller particle sizes (30–200 nm) for the southern section of the flight, while the Arctic 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).

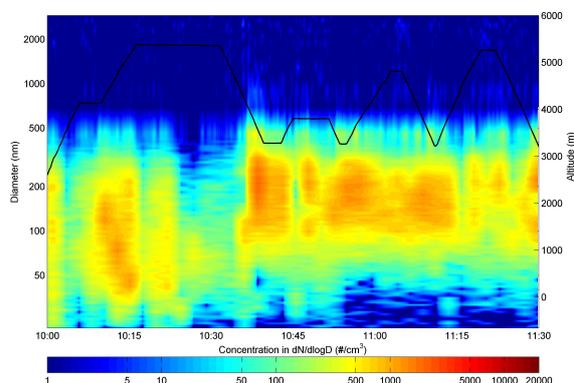


Fig. 7. Size spectrum (nm) measured as a function of time along the flight track by the SMPS (0.01 and $0.4\ \mu\text{m}$) and PCASP ($0.4\text{--}3\ \mu\text{m}$). The vertical flight pattern is shown for comparison with latitude cross-section (black line) in Figs. 13 and 2.

- 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 ($1\ \text{PVU} = 10^{-6}\ \text{kg}^{-1}\ \text{m}^2$) 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 $<55^\circ$ N, longitude $\in [-10^\circ\ \text{W}\ 30^\circ\ \text{E}]$), Asia (latitude $<55^\circ$ N, longitude

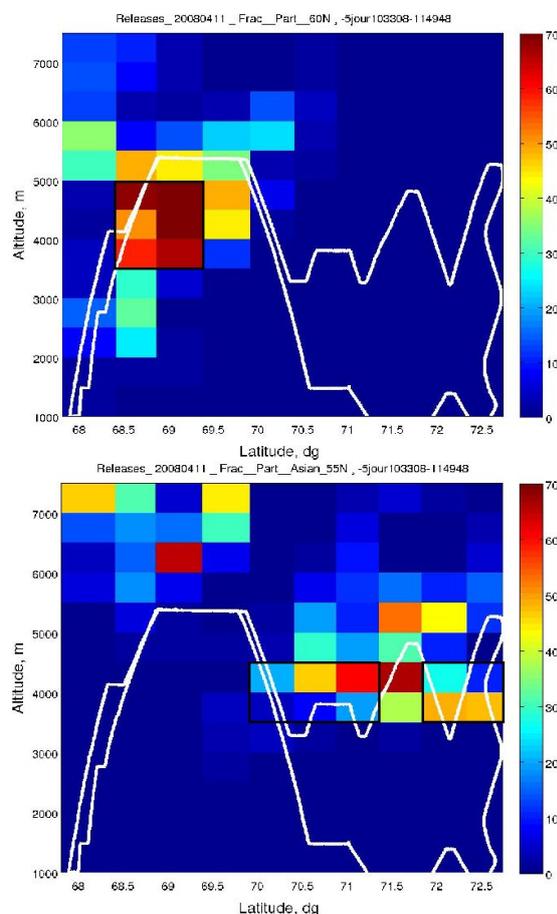


Fig. 8. Meridional vertical cross section of air mass origins calculated by Flexpart for $500\text{ m} \times 0.5^\circ \times 0.5^\circ$ boxes. The color scale indicates the fraction of particles in % being in the European (first figure) and Asian (second figure) lower troposphere ($z \leq 3\text{ km}$), 5 days before the observations. Aircraft altitude is shown in white.

$\in [30^\circ\text{ E } 180^\circ\text{ E}]$, North America (latitude $< 55^\circ\text{ N}$, longitude $\in [-180^\circ\text{ W } -30^\circ\text{ W}]$).

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 $0.5^\circ \times 0.5^\circ$. 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 observa-

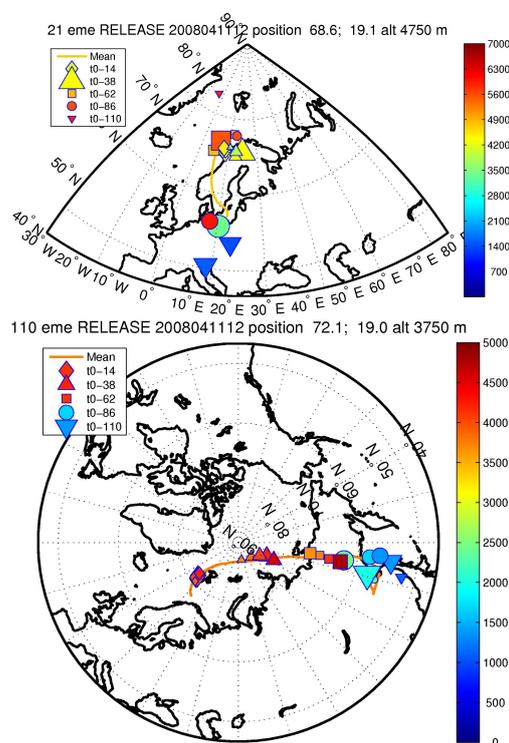


Fig. 9. 5-days FLEXPART backward time position of five clusters of the 2000 particles released between 4 and 4.5 km at 68.6° N (top panel) and between 3.5 and 4 km at 72.1° N (bottom panel) on 11/04/2008 at 12:00 UT. The clusters are plotted every 24 h from 14 h before observation, the color corresponds to its altitude, and the size of each cluster is proportional to the number of particles.

tions (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.

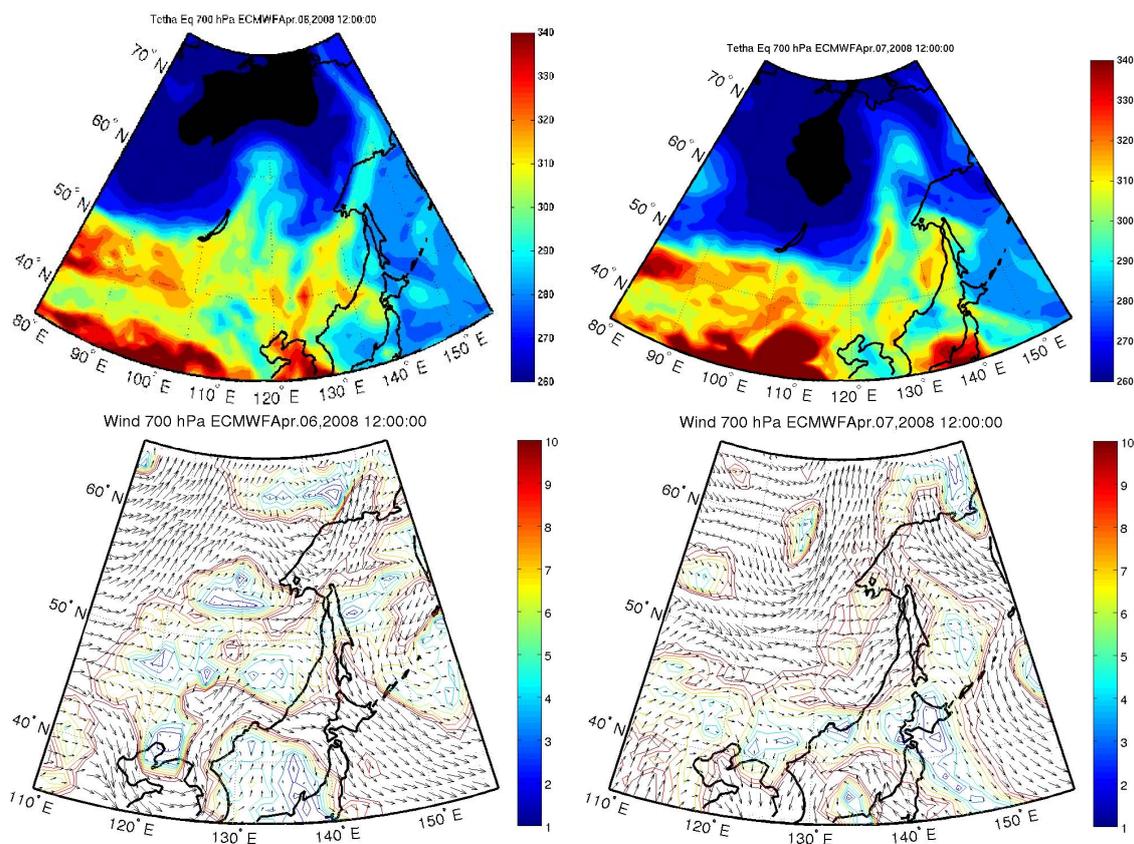


Fig. 10. ECMWF 700 hPa equivalent potential temperature in K (top row) and ECMWF 700 hPa wind field (bottom row) for the 06/04/2008 (left column) and 07/04/2008 (right column) at 12:00 UT. Colored isolines are wind speed in m s^{-1} .

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 ($<70^\circ\text{N}$) 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 $<2\text{ km}$) 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

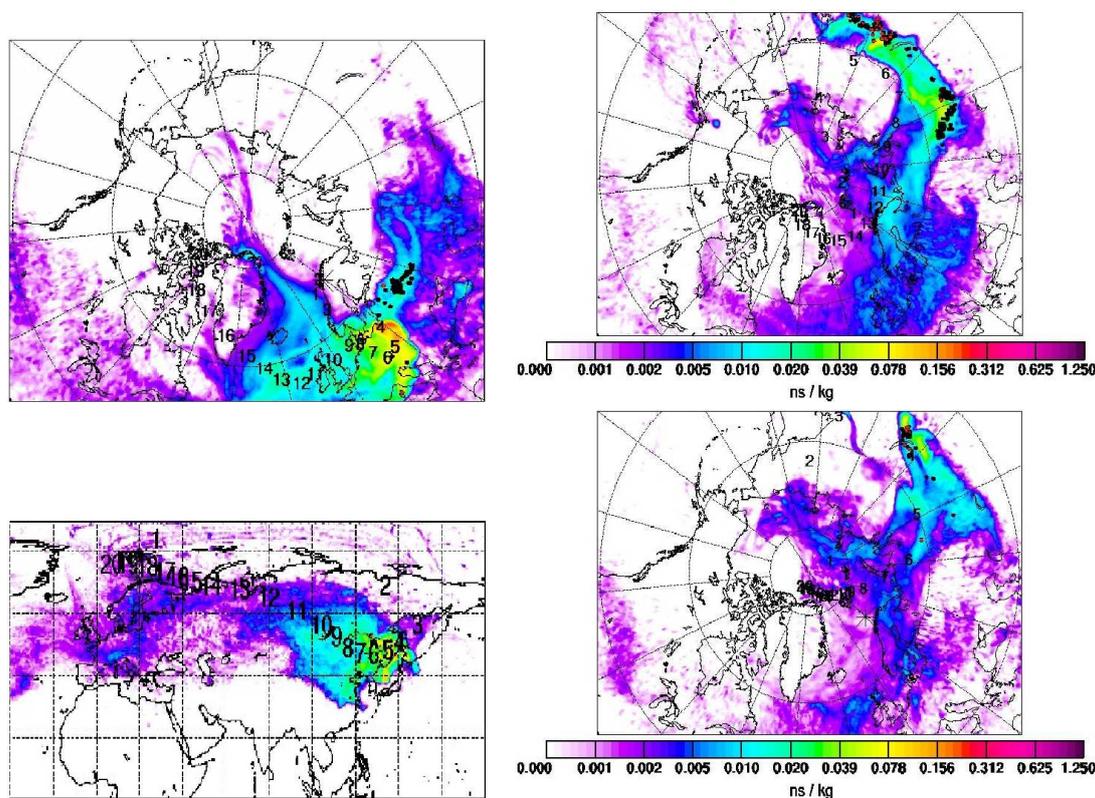


Fig. 11. Potential Emission Sensitivity (PES) in ns/kg for 4 points of the flight track 68.8° N–4500 m, 70.2° N–4200 m, 72° N–3600 m and 72.4° N–5250 m. Numbers indicate elapsed time in days since emission along the mean trajectory. (see http://transport.nilu.no/flexpart-projects?cmp=POLARCAT_FRANCE).

emission sensitivity (PES) described in Seibert and Frank (2004) and calculated for different positions along the aircraft track by John Burkhardt 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 (Cohour 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

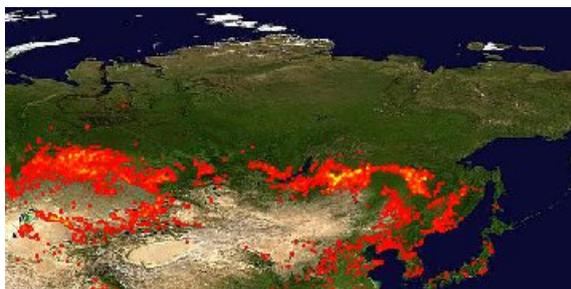


Fig. 12. Fires detected by MODIS over a 10-day period 31/03/2008 to 09/04/2008. Each colored dot indicates a location with at least one fire during the compositing period. Color ranges from low (red) to high (yellow) fire counts.

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 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).

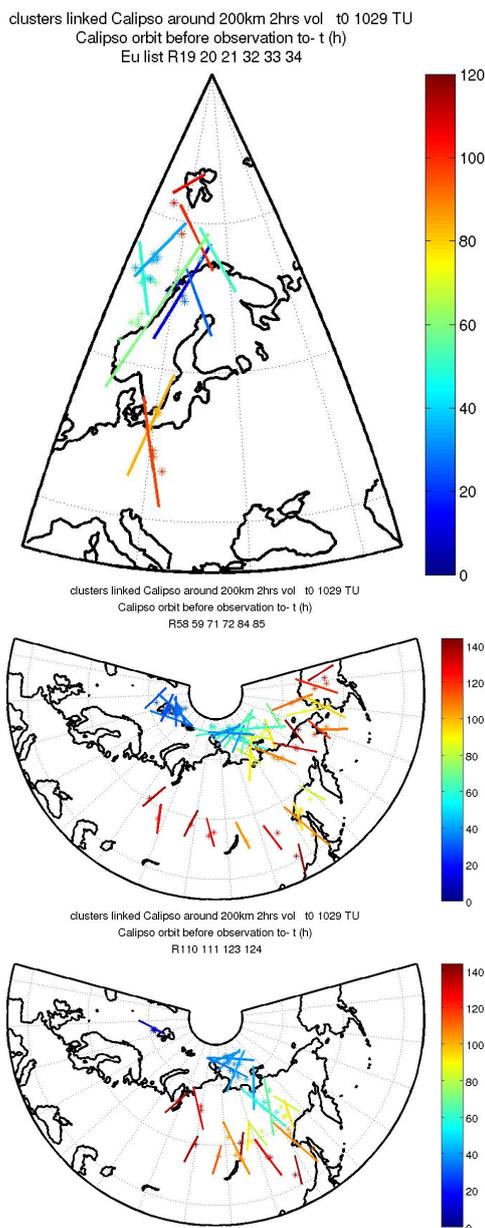


Fig. 13. Calipso track sections (line) and FLEXPART air mass positions (*) along FLEXPART trajectories initialized in the black rectangles of Fig. 8 (top left panel for 69° N, top right and bottom panel for respectively the 70.5° N and 72° N rectangles). The colors scale indicates the elapsed time in hour between the CALIPSO observation and the aircraft observation.

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} $\text{km}^{-1} \text{sr}^{-1}$	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 fulfilled 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

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} $\text{km}^{-1}\text{sr}^{-1}$	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 an 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 ($1.4\text{--}1.7 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \text{ sr}^{-1}$, i.e. a backscatter ratio R between

1.6–1.9), low color ratio (≤ 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 understand the sources of the aerosol layers seen by the aircraft.

The analysis of Table 3a and 3b focused on layers with backscatter values, $\beta_{532} \geq 2 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ ($R \geq 2$) 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 $< 125^\circ \text{ E}$ (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 $> 135^\circ \text{ E}$ (i.e. near the Pacific coast, text in red in Table 3a).

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} $\text{km}^{-1} \text{sr}^{-1}$	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), $\beta_{532} \leq 2 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ ($R \approx 1.5$) 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 $1.5 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ (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 classification 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 Catrall 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)

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 be 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 ($1.6\pm 0.3\%$) and low pseudo color ratios ($0.009\pm 0.002\%$). The Asian plume is characterized by larger particles and some 355nm depolarization ($2.1\pm 0.3\%$) 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 (≈ 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

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 knowledge of the total volume backscatter coefficient at wavelength λ which can be split into the molecular (Rayleigh) and aerosol contribution:

$$\beta_{\lambda}(z) = \beta_{\lambda,m}(z) + \beta_{\lambda,a}(z) \quad (\text{A1})$$

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:

$$P_{\lambda}(z) = K_{\lambda}(\beta_{\lambda,m}(z) + \beta_{\lambda,a}(z)) \cdot T_{\lambda,m}(z)^2 \cdot T_{\lambda,a}(z)^2. \quad (\text{A2})$$

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

$$T_x(z)^2 = \exp(-2\tau_x(z)) = \exp(-2 \int_0^z \sigma_x(z') dz'). \quad (\text{A3})$$

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 determine 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:

$$R(z) = \frac{P(z)}{K\beta_{\lambda,m}(z) \cdot \exp(-2\tau_{\lambda,m}(z))} \approx 1 + \frac{\beta_{\lambda,a}(z)}{\beta_{\lambda,m}(z)} \quad (\text{A4})$$

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

$$R_{\perp}(z) = 1 + \frac{\beta_{\perp,a}(z)}{\beta_{\perp,m}(z)} \quad R_{\parallel}(z) = 1 + \frac{\beta_{\parallel,a}(z)}{\beta_{\parallel,m}(z)} \quad (\text{A5})$$

and the ratio of the aerosol cross- to parallel-polarized backscatter coefficient is called the linear volume depolarization ratio, δ_a , given by:

$$\delta_a(z) = \frac{\beta_{\perp,a}(z)}{\beta_{\parallel,a}(z)} = \frac{R_{\perp}(z) - 1}{R_{\parallel}(z) - 1} \cdot \delta_m \quad \delta_m = \frac{\beta_{\perp,m}}{\beta_{\parallel,m}} \quad (\text{A6})$$

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:

$$\delta(z) = \frac{\beta_{\perp}(z)}{\beta_{\parallel}(z)} = \frac{R_{\perp}(z)}{R_{\parallel}(z)} = \delta_a(z) \left(1 - \frac{1}{R_{\parallel}(z)}\right) + \frac{\delta_m}{R_{\parallel}(z)}. \quad (\text{A7})$$

The pseudo depolarization ratio, δ , tends to δ_m only in a clean region where R_{\parallel} 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 be 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

$$\text{CR}(z) = \frac{\beta_{a,1.06}(z)}{\beta_{a,0.53}(z)} = \frac{R_{1.06}(z) - 1}{R_{0.53}(z) - 1} \cdot \frac{1}{16} \quad (\text{A8})$$

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:

$$\text{CR}^*(z) = \frac{\beta_{1.06}(z)}{\beta_{0.53}(z)} = \text{CR}(z) \left(1 - \frac{1}{R_{0.53}(z)}\right) + \frac{1}{16R_{0.53}(z)} \quad (\text{A9})$$

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:

$$k = -\frac{d \ln \tau_a}{d \ln \lambda} \quad (\text{A10})$$

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:

$$\text{CR}(z) = \frac{B_{0.53,a}(z)}{B_{1.06,a}(z)} \cdot 2^{-k} \quad (\text{A11})$$

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 Catrall 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 exceed 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 gratefully 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.

Bibliographie

- [Ackerman et al., 2000] Ackerman, A.S., O.B. Toon, J.P. Taylor, D.W. Johnson, P.V. Hobbs, and R.J. Ferek, 2000 : Effects of aerosols on cloud albedo : Evaluation of Twomey's parameterization of cloud susceptibility using measurements of ship tracks. *J. Atmos. Sci.*, 57, 2684-2695, doi :10.1175/1520-0469(2000)057<2684 :EOAOCA>2.0.CO ;2.
- [ACIA,2004] Arctic Climate Impact Assessment (ACIA), Impacts of a warming Arctic, Cambridge University Press, Cambridge, UK, 2004.
- [AMAP, 2008] AMAP / Quinn et al., 2008. The Impact of Short-Lived Pollutants on Arctic Climate. AMAP Technical Report No. 1 (2008), Arctic Monitoring and Assessment Programme (AMAP), Oslo, Norway.
- [Aghnatios2008] Aghnatios C. (2008). Etude d'interaction entre le dioxyde d'azote et des particules minérales d'intérêt atmosphérique. Doctorat de l' Université des Sciences et Technologies de Lille.
- [Albrecht,1989] Albrecht, B. A. : Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness, *Science*, 245, 1227-1230, 1989.
- [Barrie, 1986] Barrie, L. A, 1986. Arctic air-pollution an overview of current knowledge, *Atmos. Environ.*, 20, 643-663.
- [Björk et Molau, 2007] Björk, R. G. and U. Molau, Ecology of alpine snowbeds and the impact of global change, *Arctic, Antarctic and Alpine Research*, 39, 34-43, 2007.
- [Blanchard1985] Blanchard D. C. (1985). The oceanic production of atmospheric sea salt. *J.Geophys. Res* 90 : 961-963.
- [Shatalova et al. 2010] Shatalova, E., Kolesnikova, M. (2010, August 6). Moscow inundated by smoke as Russian heartland burns. Bloomberg. Accessed August 6, 2010.
- [Bradley et al., 1992] Bradley, R. S., F. T. Keimig and H. F. Diaz, 1992. Climatology of surface-based inversions in the North American Arctic, *J. Geophys. Res.*, 97, 15699-15712.
- [Browell et al., 2003] Browell, E. V., et al. (2003) : 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.
- [Bucholtz, (1995)] Bucholtz, A. : Rayleigh-scattering calculations for the terrestrial atmosphere, *Appl. Opt.*, 34, 2765-2773, doi :10.1364/AO.34.002765, URL <http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-34-15-2765>, 1995.

- [Cairo et al.(1999)] 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, URL <http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-38-21-4425>, 1999.
- [Capes et al.(2008)] 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 et al.(2005)] 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.
- [Carlson,1981] Carlson, T. N. (1981) Speculations on the movement of polluted air to the Arctic, *Atmos. Environ.*, 15, 1473- 1477.
- [Ramanathan et Carmichael, 2008] Ramanathan, V. and G. Carmichael, Global and regional climate changes due to black carbon, *Nature Geoscience*, Advanced online publishing, 2008.
- [Chameides et al, 1992] Chameides, W. L., Fehsenfeld, F., Rodgers, M. O., et al. : Ozone precursor relationships in the ambient atmosphere, *J. Geophys. Res.*, 97, 6037–6038, 1992.
- [Cao et al., 1998] Cao, M., Gregson, K., and Marshall, S. : Global methane emissions and its sensitivity to climate change, *Atmos. Environ.*, 32, 3293–3299, 1998.
- [Chaplin et al., 2005] Chapin, F.S., M. Sturm, M.C. Serreze, et al., Role of land-surface changes in Arctic summer warming, *Science*, 310, 657–660, 2005.
- [Christensen et al., 2004] Christensen, T. R., Johansson, T., Akerman, J., et al. : Thawing subarctic permafrost : Effects on vegetation and methane emissions, *Geophys. Res. Lett.*, 31, L04501, doi :10.1029/2003GL018680, 2004.
- [Clarke et Noone, 1985] Clarke, A. D. and Noone, K. J. : Soot in the Arctic snowpack : a cause for perturbations in radiative transfer, *Atmos. Environ.*, 19, 2045–2053, 1985.
- [Coheur et al.(2009)] Coheur, P.-F., Clarisse, L., Turquety, S., Hurtmans, D., and Clerbaux, C. : IASI measurements of reactive trace species in biomass burning plumes, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 5655–5667, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/9/5655/2009/>, 2009.
- [Crutzen, 1973] Crutzen, P. : A discussion of the chemistry of some minor constituents in the stratosphere and troposphere, *Pure Appl. Geophys.*, 106–107, 1385–1399, 1973.
- [Curry et al., 2003] Curry, R., B. Dickson, and I. Yashayaev, 2003. A change in the freshwater balance of the Atlantic Ocean over the past four decades. *Nature* 426, 826-829.
- [Damoha et al., 2004] Damoah, R., N. Spichtinger, C. Forster, P. James, I. Mattis, U. Wandinger, S. Beirle, and A. Stohl, 2004. Around the world in 17 days 2013

-
- hemispheric-scale transport of forest fire smoke from Russia in May 2003. *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 1311-1321.
- [Delmas et al., 2005] Delmas R., Mégie G. et Peuch V.-H. (2005). *Physique et chimie de l'atmosphère*. Belin.
- [Dentener et al., 2005] Dentener, F., Stevenson, D., Cofala, J., Mechler, R., Amann, M., Bergamaschi, P., Raes, F., and Derwent, R. : The impact of air pollutant and methane emission controls on tropospheric ozone and radiative forcing : CTM calculations for the period 1990-2013-2030, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1731-20131755, 2005, <http://www.atmos-chem-phys.net/5/1731/2005/>.
- [Dlugokencky et al., 2003] Dlugokencky, E. J., Houweling, S., Bruhwiler, L., Masarie, K. A., Lang, P. M., Miller, J. B., and Tans, P. P. : Atmospheric methane levels off : Temporary pause or new steady-state?, *Geophys. Res. Lett.*, 30(19), 1992, doi :10.1029/2003GL018126, 2003.
- [Dickson et al., 2002] Dickson, B., I. Yashayaev, J. Meincke, B. Turrell, S. Dye, and J. Holfort, 2002. Rapid freshening of the deep. North Atlantic Ocean over the past four decades. *Nature* 416, 832-837.
- [Duce et al.(1980)] 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, URL <http://www.jstor.org/stable/1684974>, 1980.
- [Eckhardt et al., 2003]
- [Eckhardt et al., 2006] S. Eckhardt ; K. Breivik ; S. Mano ; A. Stohl Record high peaks in PCB concentrations in the Arctic atmosphere due to long-range transport of biomass burning emissions *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions* 7, 3 (2007) 6229-6254
- [Eguchi et al.(2009)] 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, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 3137-3145, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/9/3137/2009/>, 2009.
- [Flamant et al.(1996), J. Pelon] , Flamant C., J. Pelon : Atmospheric boundary layer structure over the Méditerranée during a Tramontane event, *Quart. J. Roy. Met. Soc.*, 122, 1741-1778,1996
- [Flanner et al., 2007] Flanner, M. G., 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, D11202, doi :10.1029/2006JD008003, 2007.
- [Finlayson-Pitts et al., 1990] FINLAYSON-PITTS B. J. (1); LIVINGSTON F. E.; BERKO H. N.; Ozone destruction and bromine photochemistry at ground level in the Arctic spring *Nature* 343, 622 - 625 (15 February 1990); doi :10.1038/343622a0
- [Fiore et al., 2002] Fiore, A. M., Jacob, D. J., Field, B. D., Streets, D. G., Fernandes, S. D., and Jang, C. : Linking ozone pollution and climate change : The case for

- controlling methane, *Geophys. Res. Lett.*, 29(19), 1919, doi :10.1029/2002GL015601, 2002.
- [Fisher et al.(2009)Fisher, Jacob, Purdy, Kopacz, Le Sager, Carouge, Holmes, Yantosca, Batchelor, Strong, 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, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 9, 19 035–19 080, URL <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/9/19035/2009/>, 2009.
- [Forster et al., 2001] Forster, C., U. Wandinger, G. Wotawa, P. James, I. Mattis, D. Althausen, P. Simmonds, S. O’Doherty, C. Kleefeld, S. G. Jennings, J. Schneider, T. Trickl, S. Kreipl, H. Jäger, and A. Stohl (2001) : Transport of boreal forest fire emissions from Canada to Europe. *J. Geophys. Res.* 106, 22,887-22,906.
- [Fridlin et al., 2007] Fridlind, A. M., Ackerman, A. S., McFarquhar, G., Zhang, G., Poellot, M. R., DeMott, P. J., Prenni, A. J., and Heymsfield, A. J. : Ice properties of single-layer stratocumulus during the Mixed-Phase Arctic Cloud Experiment (M-PACE) : Part II, Model results, *J. Geophys. Res.*, 112, D24202, doi :10.1029/2007JD008646, 2007.
- [Fromm et al., 2005] Fromm M, Bevilacqua R, Servranckx R, et al., 2005. Pyrocumulonimbus injection of smoke to the stratosphere : Observations and impact of a super blowup in northwestern Canada on 3-4 August 1998, *J. Geophys. Res.*, 110, D08205, doi :10.1029/2004JD005350.
- [Pingqing Fu et al., 2009] Pingqing Fu, Kimitaka Kawamura and Leonard A. Barrie : Photochemical and other sources of organic compounds in the canadian high arctic aerosol Pollution during winter spring
- [Fuelberg et al.(2009)Fuelberg, Harrigan, and Sessions] Fuelberg, H. E., Harrigan, D. L., and Sessions, W. : A meteorological overview of the ARCTAS 2008 mission, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 9, 18 417–18 478, URL <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/9/18417/2009/>, 2009.
- [Garrett et al., 2004] Garrett, T. J., Zhao, C., Dong, X., Mace, G. G., and Hobbs, P. V. : Effects of varying aerosol regimes on low-level Arctic stratus, *Geophys. Res. Lett.*, 31, L17105, doi :10.1029/2004GL019928, 2004.
- [Garrett et Zao, 2006] Garrett, T. J. and Zhao, C. : Increased Arctic cloud longwave emissivity associated with pollution from mid-latitudes, *Nature*, 440, 787–790, 2006.
- [Generoso et al., 2007] Generoso, S., Bey, I., Attie, J.-L., and Breon, F.-M. : A satellite and model-based assessment of the 2003 Russian fires : Impact on the Arctic region, *J. Geophys. Res.*, 112, D15302, doi :10.1029/2006JD008344, 2007.
- [Girard et al., 2005] Girard, E., Blanchet, J. P., and Dubois, Y. : Effects of Arctic sulfuric acid aerosols on wintertime low-level atmospheric ice crystals, humidity and temperature at Alert, Nunavut, *Atmos. Res.*, 73, 131–148, 2005.

-
- [Granier et al., 2006] Granier, C., Niemeier, U., Jungclaus, J. H., Emmons, L., Hess, P. G., Lamarque, J.-F., Walters, S., and Brasseur, G. P. : Ozone pollution from future ship traffic in the Arctic northern passages, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L13807, doi :10.1029/2006GL026180, 2006.
- [Greenaway(1950)] Greenaway, K. R., 1950. Experiences with Arctic flying weather, Royal Meteorological Society Canadian Branch (Nov. 30, 1950), Toronto, Ontario, Canada.
- [Haagen-Smit, 1952] Haagen-Smit, A. J. : Chemistry and physiology of Los Angeles smog, *Ind. Eng. Chem.*, 44, 1342-1346, 1952.
- [Hagler et al., 2007] 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.
- [Hall et Qu., 2006] Hall, A. and X. Qu, Using the current seasonal cycle to constrain snow albedo feedback in future climate change, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L03502, doi :10.1029/2005GL025127, 2006.
- [Hamonou et al.(1999)] 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, 22,257-22,270, 1999.
- [Hanel, 1976] Hanel G. (1976) *Ado. Geophys.* 19, 73. Jennings, S. G. (1976) Physical characteristics of the natural atmospheric aerosol.
- [Hanse et al. 1997] Hansen, J., Sato, M., and Ruedy, R., 1997b : Radiative forcing and climate response. *Journal of Geophysical Research D : Atmospheres*, 102 : 6831-6864.
- [Hansen et Nazarenko, 2004] Hansen, J. and Nazarenko, L. : Soot climate forcing via snow and ice albedos, *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 101, 4232-4237, 2004.,
- [Harper, 1999] Harper, L. A., Denmead, O. T., Freney, J. R., and Byers, F. M. : Direct measurements of methane emissions from grazing and feedlot cattle, *J. Anim. Sci.*, 77, 1392-1401, 1999.
- [Hess et al.(1998), M., P. Koepke, and I. Schult] Hess, M., P. Koepke, and I. Schult : Optical properties of aerosols and clouds : The software package OPAC. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 79, 831-844
- [Hodzic, 2005] Hodzic A. (2005). Modélisation des aérosols en Ile-de-France. Doctorat de l'Ecole Polytechnique.
- [Höller et al., 2002] Höller R., Tohno S., Kasahara M. et Hitzenberger R. (2002). Long-term characterization of
- [Houweling, 1999] Houweling, S., Kaminski, T., Dentener, F., Lelieveld, J., and Heimann, M. : Inverse modeling of methane sources and sinks using the adjoint of a global transport model, *J. Geophys. Res.*, 104, 26 137-160, 1999.
- [Huang, 1998] Huang Y., Sass, R. L., and Fisher, F. M. : A semi-empirical model of methane emission from flooded rice paddy soils, *Global Change Biol.*, 4, 247-268, 1998.

- [IPCC, 2001] IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change) : Radiative forcing of climate change, in : *Climate Change 2001*, Cambridge Univ. Press, New York, Cambridge University Press, 2001.
- [IPCC, 2007] IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change) : Summary for Policymakers, Contribution of Working Group I to the 4th Assessment Report, 2007.
- [Iversen, 1984] Iversen, T. (1984) On the atmospheric transport of pollution to the Arctic, *Geophys. Res. Lett.*, 11, 457-460.
- [Iversen et Joranger, 1985] Iversen, T. and Joranger, E. : Arctic air pollution and large scale atmospheric flows, *Atmos. Environ.*, 19, 2099-2132, 1985.
- [Johnson, 2000] Johnson, D., Johnson, K., Ward, G. M., and Branine, M. : Ruminants and other animals, in : *Atmospheric methane : Its role in the global environment*, edited by : Khalil, M., Springer-Verlag, New York, NY, 112-201, 2000.
- [Kampe and Sokolik(2007)] 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, L12 806, doi :10.1029/2007GL029805, 2007.
- [Kasischke et al., 2005] Kasischke, E. S., Hyer, E. J., Novelli, P. C., Bruhwiler, P., French, N., Sukhinen, A. I., Hewson, J. H., and Stocks, B. J. : Influences of boreal fire emissions on Northern Hemisphere atmospheric carbon and carbon monoxide, *Global Biogeochem. Cy.*, 19, GB1012, doi :10.1029/2004GB002300, 2005.
- [Kirchgessner, 2000] Kirchgessner, D. A., Piccot, S. D., and Winkler, J. D. : Estimate of global methane emissions from coal mines, *Chemosphere*, 26, 453-2013, 1993.
- [Klonecki et al, 2003] Klonecki, A., Hess, P., Emmons, L., Smith, L., Orlando, J., and Blake, D. : Seasonal changes in the transport of pollutants into the Arctic troposphere 2013 Model study, *J. Geophys. Res.*, 108(D4), 8367, doi :10.1029/2002JD002199, 2003.
- [Koch et Hansen, 2005] Koch, D., and J. Hansen, 2005. Distant origins of Arctic black carbon : A Goddard Institute for Space Studies model experiment. *J. Geophys. Res.*, 110, D04204, doi :10.1029/2004JD005296.
- [Korontzi et al., 2006] Korontzi, S., McCarty, J., Loboda, T., Kumar, S., and Justice, C. : Global distribution of agricultural fires in croplands from 3 years of Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) data, *Global Biogeochem. Cy.*, 20, GB2021, doi :10.1029/2005GB002529, 2006.
- [Lasserre et al., 2005] Lasserre F., Cautenet G., Alfaro S. C., Gomes L., Rajot J. L., Lafon S., Gaudichet A., Chatenet B., Maille M., Cachier H., Chazette P. et Zhang X. Y. (2005). Development and validation of a simple mineral dust source inventory suitable for modelling in North Central China. *Atmospheric Environment* 39(21) : 3831-3841.
- [Lavoue et al., 2000] Lavoue, D., C. Lioussé, H. Cachier, B. J. Stocks, and J. G. Goldammer, 2000. Modeling of carbonaceous particles emitted by boreal and temperate wildfires at northern latitudes. *J. Geophys. Res.*, 105, 26871-26890.
- [Liu et al.(2004)] Liu, Z., Ali H. Omar, Yongxiang Hu, Mark A. Vaughan, David M. Winker. CALIOP Algorithm Theoretical Basis Document Part 3 : Scene Classification Algorithms, 2004.

-
- [Liu et al.(2009)] Liu, Z., Vaughan, M., Winker, D., Kittaka, C., Getzewich, B., Kuehn, R., Omar, A., Powell, K., Treppe, C., and Hostetler, 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.
- [Lubin et Volgelmann, 2007] Lubin, D. and Vogelmann, A. M. : Expected magnitude of the aerosol shortwave indirect effect in springtime Arctic liquid water clouds, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L11801, doi :10.1029/2006GL028750, 2007.
- [McConnell et al., 2007] McConnell, J. R., Edwards, R., Kok, G. L., et al. : 20th century industrial black carbon emissions altered Arctic climate forcing, *Science*, 317, 1381–1384, 2007.
- [MacCracken et al., 1986] MacCracken, M. C., Cess, R. D., and Potter, G. L. : Climatic effects of anthropogenic Arctic aerosols : an illustration of climatic feedback mechanisms with one- and two-dimensional climate models, *J. Geophys. Res.*, 91, 445–450, 1986.
- [Macdonald et al., 2005] Macdonald, R. W., T. Harner, and J. Fyfe, 2005. Recent climate change in the Arctic and its impact on contaminant pathways and interpretation of temporal trend data. *Sci. Tot. Env.*, 342, 5-86.c
- [Menzies et al., 1998] Robert T. Menzies, David M. Tratt, and William H. Hunt, Lidar In-Space Technology Experiment Measurements of Sea Surface Directional Reflectance and the Link to Surface Wind Speed, *Appl. Opt.* 37, 5550-5559 (1998)
- [Mitchell (1957)] Mitchell, J. M., 1957. Visual range in the polar regions with particular reference to the Alaskan Arctic, *J. Atmos. Terr. Phys. Special Suppl.*, 195–211.r
- [Nakano et al., 2000] Nakano, T., Kuniyoshi, S., and Fukuda, M. : Temporal variation in methane emission from tundra wetlands in a permafrost area, northeastern Siberia, *Atmos. Environ.*, 34, 1205–1213, 2000.
- [Nedelec et al., 2003] Nedelec, P., Cammas, J.-P., Thouret, V., Athier, G., Cousin, J.-M., Legrand, C., Abonnel, C., Lecoq, 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, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/3/1551/2003/>, 2003.
- [NSIDC, 2007] National Snow and Ice Data Center (NSIDC) : Arctic sea ice shatters all previous record lows, NSIDC Arctic Sea Ice News Fall 2007, 1 October 2007.
- [Oltmans et al., 1998] Oltmans, S. J., Galbally, I. E., Brunke, E. G., et al. : Trends of ozone in the troposphere, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 139–142, 1998.
- [Omar et al.(2009)] Omar, A., Winker, D., Kittaka, C., Vaughan, M., Liu, Z., Hu, Y., Treppe, 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.
- [O’Neill et al.(2003)] O’Neill, 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.

- [Parkinson et al., 1999] Parkinson, C.L., D. J. Cavalieri, P. Gloersen, J. H. Zwally, and J. C. Comiso, 1999. Arctic sea ice extents, areas, and trends, 1978-1996. *J. Geophys. Res.*, 104, 208737-20856.n,
- [Paris et al.(2009)Paris, Arshinov, Ciais, Belan, and Nédélec] 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, *Atmospheric Environment*, 43, 1302 – 1309, doi :DOI : 10.1016/j.atmosenv.2008.11.032, URL <https://access-distant.upmc.fr:443/http/www.sciencedirect.com/science/article/B6VH3-42009>.
- [Peck and K. Reeder, 1972] Peck and K. Reeder Dispersion of air *JOSA* 62, 958-962 (1972)
- [Pelon et al., 2002] Pelon, C. Flamant, P. Chazette, J.-F.Léon, D. Tanré,M. Sicard, S. K. Satheesh, : 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.
- [Petit et al., 1999] Petit, J., Jouzel, J., Raynaud, D., et al. : Climate and atmospheric history of the past 420,000 years from the Vostok ice core, Antarctica, *Nature*, 399, 429-436, 1999.
- [Prinn et al., 1995] Prinn, R. G., Weiss, R. F., Miller, B. R., et al. : Atmospheric trends and lifetime of CH₃CCl₃ and global OH concentrations, *Science*, 269, 1872-1889, 1995.
- [Pueschel et Kinne, 1995] Pueschel, R.F. and S.A. Kinne, 1995. Physical and radiative properties of Arctic atmospheric aerosols, *Sci. Tot. Environ.*, 161, 811-824.
- [Quinn et al., 2007] Quinn, P. K., Shaw, G., Andrews, E., Dutton, E. G., Ruoho-Airola, T., Gong, S. L. : Arctic Haze : Current trends and knowledge gaps, *Tellus*, 59B, 992-1014, 2007.
- [Quinn et al., 2008] 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 et al., 1977] Rahn, K. A., R. Borys, and G. E. Shaw, 1977. The Asian source of Arctic Haze bands, *Nature*, 268, 713-715. Richter, A., F. Wittrock, M. Eisinger, and J.P. Burrows, GOME observations of tropospheric BrO in northern hemispheric spring and summer, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 2683-2686, 1998.
- [Ritter et al., 2005] Ritter, C., Notholt, J., Fisher, J., and Rathke, C. : Direct thermal radiative forcing of tropospheric aerosol in the Arctic measured by ground based infrared spectrometry, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L23816, doi :10.1029/2005GL024331, 2005.
- [Sellegri et al.(2005)] 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, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5, 373–384, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/5/373/2005/>, 2005.
- [Scheuer et al., 2003] Scheuer, E. et al., 2003. Seasonal distributions of fine aerosol sulfate in the North American Arctic basin during TOPSE, *J. Geophys. Res.*, 108, 8370, doi :10.1029/2001JD001364.
- [Seibert and Frank(2004)] Seibert, P. and Frank, A. : Source-receptor matrix calculation with a Lagrangian particle dispersion model in backward mode, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4, 51–63, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/4/51/2004/>, 2004.
- [Seinfeld, 1988] Seinfeld, J. H. : Ozone air quality models : A critical review, *J. Air Pollut. Control Assoc.*, 38, 616–620, 1988.
- [Seinfeld et Pandis, 1998] 1998. *Atmospheric chemistry and physics*. John Wiley, Sons.
- [Sharma et al., 2006] Sharma, S., Andrews, E., Barrie, L. A., Ogren, J. A., and Lavoue, D. : Variations and sources of the equivalent black carbon in the High Arctic revealed by long term observations at Alert and Barrow : 1989–2003, *J. Geophys. Res.*, 111, D14208, doi :10.1029/2005JF006581, 2006.
- [Shawet Stamnes, 1980] Shaw, G. E. and Stamnes, K. : Arctic haze : perturbation of the polar radiation budget, *Am. N.Y. Acad. Sci.*, 338, 533–546, 1980.
- [Shaw, 1981] Shaw, G. E. : Eddy diffusion transport of Arctic pollution from the mid-latitudes : a preliminary model, *Atmos. Environ.*, 15, 1483–1490, 1981.
- [Shaw, 1995] Shaw, G. E. : The Arctic haze phenomenon, *B. Am. Meteorol. Soc.*, 76, 2403–2413, 1995.
- [Shindell et al., 2006] Shindell, D., Faluvegi, G., Lacis, A., Hansen, J., Ruedy, R., and Aguilar, E. : Role of tropospheric ozone increases in 20th-century climate change, *J. Geophys. Res.*, 111, D08302, doi :10.1029/2005JD006348, 2006.
- [Shindell et al., 2007] Shindell, D., Local and remote contributions to Arctic warming, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L14704, doi :10.1029/2007GL030221, 2007.
- [Shindell et al., 2008] Shindell, D., et al., A multi-model assessment of pollution transport to the Arctic, *Atm. Chem. Phys. Disc.*, 8, 8385–8429, 2008.
- [Sirois et Barrie,1999] Sirois, A. and Barrie, L. A. : Arctic lower tropospheric aerosol trends and composition at Alert, Canada : 1980–1995, *J. Geophys. Res.*, 104, 11599–11618, 1999.
- [Smol et al., 2005] Smol, J.P., A.P. Wolfe, H.J.B. Birks, et al., Climate-driven regime shifts in the biological communities of Arctic lakes, *Proc. Nat. Acad. Sci.*, 102, 4397–4402, 2005.
- [Spahni et al., 2005] Spahni, R., Chappellaz, J., Stocker, T. F., et al. : Atmospheric methane and nitrous oxide of the late Pleistocene from Antarctic ice cores, *Science*, 310, 1317–1321, 2005.,2002.002.
- [Stocks et al., 1998] Stocks, B.J., Fosberg, M.A., Lynham, T.J., Mearns, L., Wotton, B.M., Yang, Q., Jin, J-Z., Lawrence, K., Hartley, G.R., Mason, J.A., and McKenney, D.W., 1998. Climate change and forest fire potential in Russian and Canadian boreal forests. *Climatic Change*, 38, 1-13.

- [Stohl, 2001] Stohl, A., 2001. A one-year Lagrangian "climatology" of airstreams in the northern hemisphere troposphere and lowermost stratosphere. *J. Geophys. Res.*, 106, 7263-7279.
- [Stohl et al., 2002] Stohl, A., S. Eckhardt, C. Forster, P. James, N. Spichtinger, 2002 : On the pathways and timescales of intercontinental air pollution transport. *J. Geophys. Res.*, 107, 4684, doi : 10.1029/2001JD001396.
- [Stohl, 2006] Stohl, A., Andrews, E., Burkhardt, 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., Ström, J., Tørseth, 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, 2006] Stohl, A. : Characteristics of atmospheric transport into the Arctic troposphere. *J. Geophys. Res.* 111, D11306, doi :10.1029/2005JD006888, 2006.
- [Stohl et al., 2007] Stohl, A., Berg, T., Burkhardt, J. F., et al. : 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, 511534, 2007, <http://www.atmos-chemphys.net/7/511/2007/>.
- [Streets and Waldhoff (2000)] Streets, D. and Waldhoff, S. : Present and future emissions of air pollutants in China : : SO₂, NO_x, and CO, *Atmos. Environ.*, 34, 363-374, doi :10.1016/S1352-2310(99)00167-3, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/B6VH3-3Y162CG-3/2/dfaeb3ef6e2170f1b0e29> 2000.
- [Stroeve et al., 2006] Stroeve, J. C., Markus, T., Meier, W. N., and Miller, J. : Recent changes in the Arctic melt season, *Ann. Glaciol.*, 44, 367374, 2006.
- [Sundqvist et al., 2008] Sundqvist, M.K, R.G. Björk, and U. Molau, Establishment of boreal forest species in alpine dwarf-shrub heath in subarctic Sweden, *Plant Ecology and Diversity*, 1, 67-75, 2008.
- [Twomey, 1977] Twomey, S. : The influence of pollution on the shortwave albedo of clouds, *J. Atmos. Sci.*, 34, 11491152, 1977.
- [U.S. Standard Atmosphere, 1976] U.S. Standard Atmosphere, 1976, U.S. Government Printing Office, Washington, D.C., 1976.
- [Walker, 2006] Walker, M. D. et al., Plant community responses to experimental warming across the tundra biome, *PNAS*, 103, 1342-1346, 2006.
- [Walter et al., 2006] Walter, K. M., Zimov, S. A., Chanton, J. P., Verbyla, D., and Chapin III, F. S. : Methane bubbling from Siberian thaw lakes as a positive feedback to climate warming, *Nature*, 443, 7175, 2006.
- [Warneke et al.(2009)] 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.
- [Warren et Wicombe,1985] Warren, S. G. and Wiscombe, W. J. : Dirty snow after nuclear war, *Nature*, 313, 467-470, 1985.
- [Weber et al.(2003),] 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.
- [Whitby et Cantrel, 1976] Whitby K. T. et Cantrell B. (1976). Fine particles. International Conference of Environmental Sensing and Assessment, Las Vegas, NV, Institute of Electrical and Electronic Engineers.
- [Wotawa et Trainer, 2000] Wotawa, G., and M. Trainer, 2000. The influence of Canadian forest fires on pollutant concentrations in the United States. *Science*, 288, 324-328.
- [Wu et al., 2005] Wu, P., R. Wood, and P. Stott, 2005. Human influence on increasing Arctic river discharges. *Geophys. Res. Lett.* 32, L02703, doi :10.1029/2004GL021570.
- [Wuebbles et al., 2002] Wuebbles, D. J. and Hayhoe, K. : Atmospheric methane and global change, *Earth-Sci. Rev.*, 57, 177-210, 2002.
- [Zwally et al., 2002] Zwally, H. J., Abdalati, W., Herring, T., Larson, K., Saba, J., and Steffen, K. : Surface melt-induced acceleration of Greenland ice- sheet flow, *Science*, 297, 218-222, 2002.
- [Zimov et al., 2006] Zimov, S. A., Schuur, E. A. G., and Chapin III, F. S. : Climate change : Permafrost and the global carbon budget, *Science*, 312, 1612-1613, 2006.

Résumé

Dans le cadre de la campagne POLARCAT-France, ayant eu lieu au nord de la Suède en avril 2008, plusieurs observations de panaches d'aérosols furent analysées. L'étude des panaches d'aérosols repose sur les mesures d'un lidar à rétrodiffusion émettant à 355, 532 et 1064 nm et équipé d'un canal pour mesurer la dépolarisation à 355 nm. Trois paramètres optiques (les rapports de diffusion, le pseudo rapport de couleur (CR*), et de dépolarisation) fournissent des informations sur l'épaisseur optique, le rapport entre fraction fine et fraction grossière, et la présence d'aérosols minéraux. Une climatologie sur les propriétés optiques de l'aérosol a été réalisée pour établir les gradients méridiens, l'évolution temporelle pendant la campagne et leur dépendance avec l'origine des masses d'air. Le lidar spatial CALIOP calcule les mêmes paramètres optiques que le lidar aéroporté. L'intercomparaison entre les deux instruments a montré une différence importante sur les valeurs absolues de CR*, qui est dû à des différences de méthode d'étalonnage entre les deux instruments. Néanmoins, les variations relatives des paramètres optiques restent cohérentes. Pour identifier les sources d'aérosols, une étude lagrangienne a été menée avec des simulations du modèle de transport, FLEXPART, combiné aux mesures CALIOP. Cette analyse montre que l'aérosol résulte d'un mélange de trois sources : pollution transportés du nord-est de l'Asie et d'Europe, des feux de forêt et agricoles de Sibérie et des poussières désertiques d'Asie Centrale. Enfin, une étude sur les propriétés optiques de l'aérosol a été effectuée sur les incendies de l'été 2010 en Russie et a permis une comparaison de l'impact de cet épisode d'été avec les observations de 2008.

Mots-clés: Aérosol troposphérique, Arctique, Dynamique troposphérique, Satellite, Lidar.

Abstract

As part of the campaign POLARCAT France, which took place north of Sweden in April 2008, several observations of aerosol plumes were analyzed. The study of aerosol plumes was based on measurements of a backscatter lidar emitting at 355, 532 and 1064 nm with a channel to measure the depolarization at 355 nm. Three optical parameters (the scattering ratio, the pseudo color ratio (CR *), and depolarization) provide information on the optical thickness, the relationship between fine fraction and coarse fraction and the presence of mineral aerosols. A climatology of the optical properties of the aerosol was constructed to establish the gradients, temporal evolution during the campaign and their relation with the origin of air masses. The spatial lidar CALIOP calculates the same optical parameters as the airborne lidar. The intercomparison between the two instruments showed a significant difference in the absolute values of CR *. However, variations of optical parameters remain consistent. To identify the sources of aerosols, a study was conducted with Lagrangian transport model simulations using FLEXPART, combined with data from CALIOP. This analysis shows that the aerosol is a mixture of

three sources : pollution from north-east Asia and Europe, forest fires and agricultural Siberian and central Asian desert dust. Finally, a study on the optical properties of the aerosol was focusing on into fires during summer 2010 in Russia and included a comparison of the impact of this episode with the observations collected in 2008.