HAL
open science

Les nuages de glace en Arctique : Mécanismes de formation

Caroline Jouan

To cite this version:

Caroline Jouan. Les nuages de glace en Arctique : Mécanismes de formation. Physique Atmosphérique et Océanique [physics.ao-ph]. Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II, 2013. Français. NNT : . tel-00843520v1

HAL Id: tel-00843520

https://theses.hal.science/tel-00843520v1

Submitted on 11 Jul 2013 (v1), last revised 4 Apr 2014 (v2)

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.

N° d'Ordre : D.U. 2350

UNIVERSITE BLAISE PASCAL

U.F.R. Sciences et Technologies

ECOLE DOCTORALE DES SCIENCES FONDAMENTALES

N° 746

THESE

présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR D'UNIVERSITE

Spécialité : Physique de l'Atmosphère

Par **JOUAN Caroline**

Titulaire du **Master Recherche en Sciences de l'Univers.**

LES NUAGES DE GLACE EN ARCTIQUE : MÉCANISMES DE FORMATION

Soutenue publiquement le 26 avril 2013, devant la commission d'examen :

Président :	Wolfram WOBROCK (LaMP, Clermont-Ferrand)
Rapporteurs :	Jean-Louis BRENGUIER (METEO-FRANCE, Toulouse) Jérôme RIEDI (LOA, Lille)
Examinateurs :	Jean-Claude ROGER (LaMP, Clermont-Ferrand) Julie THERIAULT (UQÀM, Montréal) Jean-Pierre BLANCHET (UQÀM, Montréal)
Directeurs de thèse :	Jacques PELON (LATMOS, Paris) Éric GIRARD (UQÀM, Montréal)

REMERCIEMENTS

Mes remerciements s'adressent, en premier lieu, à mes directeurs de thèse: Éric Girard et Jacques Pelon. Ils ont accepté de participer à cette expérience de cotutelle de thèse et se sont assurés de son bon déroulement. Présents et disponibles, leurs divers conseils et commentaires m'ont guidé pendant ces 4 années et m'ont permis d'améliorer mes connaissances afin d'enrichir mon travail.

J'ai une pensée pour Vincent Giraud, qui très favorable à ce projet de coopération scientifique entre deux équipes de recherche française et canadienne, amorça la procédure de cotutelle entre le LaMP et l'UQÀM. Malheureusement, son départ précipité ne m'a pas laissé le temps de le rencontrer en personne.

Je remercie également mes co-directeurs: Jean-Pierre Blanchet (UQÀM) pour ses commentaires enthousiastes; et Wolfram Wobrock (LaMP) pour m'avoir accueilli au sein du LaMP.

Mes remerciements s'adressent aussi aux rapporteurs de thèse: Jérôme Riedi et Jean-Louis Brenguier, ainsi qu'aux examinateurs externes: Jean-Claude Roger et Julie Theriault pour avoir accepté de participer à la dernière étape de ce projet de recherche.

À Ismail Gultepe (Environnement Canada), Julien Delanoë (LATMOS), Greg McFarquhar (Université de l'Illinois) et Paul Lawson (SpecIn.) pour leurs précieux conseils scientifiques qui m'ont beaucoup aidé pendant ce doctorat.

Aux organismes de soutien financier: CNES, FARE, FQRNT, GEC3EG, IPY et NSERC. Ces financements m'ont permis de mener à bien ce projet de recherche; d'assister à de nombreuses conférences et écoles d'été scientifiques intéressantes qui ont su me redonner la motivation tout en enrichissant mes connaissances et en élargissant mon réseau professionnel.

À Georges Huard, Frédérick Toupin et Nadjet Labassi (UQÀM) ainsi qu'à Philippe Weill et Pascal Genau (LATMOS) pour leur indispensable soutien informatique. À Delphine

Person (UQÀM), Francine Rheault (UQÀM), et Eliane Passemard (UBP) qui m'ont aidé à surmonter les nombreux problèmes administratifs liés à la cotutelle de thèse.

À tous les collègues et amis de l'UQAM, d'OURANOS et du LATMOS, pour leur aide, leur soutien et surtout pour leur présence aux innombrables 5@7, de bons moments qui nous ont permis de bien décompresser. À une amie, Melinda, pour avoir passé du temps à réviser l'anglais de mes articles.

Et enfin un grand merci à mes amis ainsi qu'à ma famille, mes parents, mon frère et mon conjoint. Même s'ils n'ont pas toujours compris mes choix concernant le déroulement du doctorat, ils m'ont toujours fait confiance, m'ont supporté et encouragé tout au long de cette thèse.

TABLE DES MATIÈRES

LISTE DES FIGURES ix

LISTE DES TABLEAUX xvii

LISTE DES ABRÉVIATIONS, SIGLES ET ACRONYMES xix

LISTE DES SYMBOLES xxiii

RÉSUMÉ xxv

ABSTRACT xxvii

CHAPITRE I
ARCTIQUE: LABORATOIRE NATUREL POUR L'ÉTUDE DES INTERACTIONS NUAGE DE GLACE - AEROSOL - RAYONNEMENT 1

1.1 L'Arctique: une région clé pour la surveillance des changements climatiques 1

1.1.1 Intérêt scientifique 1

1.1.2 Atmosphère Arctique 2

1.2 Les nuages de glace arctiques: rôle et formation 4

1.2.1 Rôle des nuages de glace dans le climat arctique 4

1.2.2 Microphysique des nuages de glace 5

1.3 Effet indirect des aérosols sur les nuages de glace 9

1.3.1 Les aérosols en Arctique: Pollution transfrontière au goût acide . . . 9

1.3.2 Effet des aérosols acides sur les nuages de glace 11

1.3.3 Evaluation de l'effet SIFI sur les propriétés nuageuses et le bilan radiatif en surface en Arctique par la modélisation 14

1.3.4 À la recherche d'une preuve observationnelle de l'effet SIFI 15

1.4 Mesures microphysiques des nuages de glace: Méthodes et Instruments . . . 18

1.4.1 Définition des paramètres microphysiques 18

1.4.2 La microphysique aéroportée in-situ 21

1.4.3 La synergie des instruments de télédétection 24

1.4.4 Trajectographie Lagrangienne 25

1.5 Objectifs, plan et pertinence du projet de recherche 26

1.5.1 Objectifs et plan de thèse 26

1.5.2 Pertinence du sujet de recherche 27

CHAPITRE II
CHARACTERIZATION OF ARCTIC ICE CLOUD PROPERTIES OBSERVED DURING ISDAC 29

2.1 Introduction 31

2.2 Observations and Methodology 34

2.2.1 Identification of ice clouds 34

2.2.2 Airborne thermodynamical, microphysical and aerosol instruments . 35

2.2.3 Performance of instruments measuring individual cloud particles . . 39

2.2.4 Derived Bulk Parameters 40

2.2.5 Remote sensing data 43

2.3 Results 45

2.3.1 Selected ice clouds 45

2.3.2 N_{ic} - R_{ei} versus RH_{Ice} - T_a measurements: a statistical approach . 47

2.3.3 Case studies 48

2.4 Discussion 71

2.5 Summary 73

2.6 Conclusion et Transition: Analyse des différentes hypothèses menant à la formation d'un TIC-2B 74

CHAPITRE III
ON THE RELATIONSHIP BETWEEN ARCTIC ICE CLOUDS AND POLLUTED AIR MASSES OVER THE NORTH SLOPE OF ALASKA IN APRIL 2008 81

3.1 Introduction 83

3.2 Alaskan pollution and meteorological conditions in April 2008 87

3.3 Potential sources of SO_2 pollution in Alaska 91

3.4 Transport patheways 94

3.5 Polluted air masses - Arctic ice cloud Interactions: case studies 97

3.5.1 ISDAC specific cases: overwiew and methodology 97

3.5.2 1 April 2008 – TIC-1/2A-F9 ice cloud 102

3.5.3 15 April 2008 – TIC-2B-F21 ice cloud 108

3.6 Discussion 114

3.7 Summary and Conclusion 117

CHAPITRE IV
ZONES ARCTIQUES PROPICES À LA FORMATION DES NUAGES DE GLACE DE TYPE TIC-2B 119

4.1 Introduction 119

4.2 Distribution spatiale et temporelle des aérosols vus par le satellite CALIPSO 120

4.3 État thermodynamique de l'atmosphère arctique 123

CHAPITRE V
CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES 129

5.1 Conclusions 129

5.2 Justification des orientations de recherche 130

5.3 Originalité et Perspectives 133

APPENDICE A
TRAITEMENT DES MESURES CALIPSO-CLOUDSAT 137

A.1 Constellation des satellites A-Train 137

A.2 La mission CloudSat 137

A.2.1 Radar profileur de nuages 137

A.2.2 Equations du radar 138

A.2.3 Méthode de traitement des mesures du radar Cloudsat 139

A.3 La mission CALIPSO 140

A.3.1 Lidar CALIOP 140

A.3.2 Equations du lidar 141

A.3.3 Méthode de traitement des mesures du lidar CALIPSO 144

A.4 Synergie lidar CALIPSO - radar CloudSat: Algorithme VarCloud 146

APPENDICE B
MODÈLE ATMOSPHÉRIQUE FLEXPART 151

B.1 Description du modèle 151

B.2 Physique du modèle 151
B.2.1 Hauteur de la CLA 151
B.2.2 Calcul de la trajectoire des particules 152
B.2.3 Vent turbulent 152
B.2.4 Convection humide 153
B.3 Données météorologiques et architecture 153
B.4 Trajectographie 154
APPENDICE C
MESURE DU SO_2 PAR LE SPECTROMÈTRE OMI DE EOS-AURA 157
C.1 Spectromètre OMI à bord du satellite EOS-Aura 157
C.2 Densités de colonne oblique et verticale. 157
C.3 Aperçu de l'algorithme BRD (Band Residual Difference) 159
C.4 Aperçu de l'algorithme LF (Linear Fit) 161
C.5 Détermination du facteur de masse d'air (AMF pour Air-Mass Factor) . . 161
BIBLIOGRAPHIE 163

LISTE DES FIGURES

Figure Page

1.1 Carte de l'Arctique (http://geology.com/world/arctic-ocean-map.shtml). 2

1.2 Moyenne saisonnière de (a) la pression au niveau de la mer (hPa) (les contours bleus indiquent les pressions < 1014 hPa) et de (b) la température de l'air en surface (les contours bleus indiquent des températures < 0 °C), dans l'hémisphère nord en hiver (ACIA, 2005). 3

1.3 Représentation schématique des différents modes de nucléation des cristaux de glace (Dymarska, 2005). 7

1.4 Diagramme de morphologie des cristaux de glace atmosphériques provenant de résultats en laboratoire (Bailey et Hallett, 2004) et d'images CPI de différentes campagnes de mesure (Bailey et Hallett, 2009). 8

1.5 Tendances annuelles des émissions anthropiques de SO_2 par région (Amérique du Nord = USA + Canada; Asie de l'Est = Chine + Japon + Corée du sud) de 1850 à 2005 estimées à partir d'inventaires des émissions de SO_2 (Smith et al., 2011). 10

1.6 Exemple d'une scène Arctique, incluant β_{532} mesuré (CAL-LID-L1-Prov-V2-02.2009-01- 05T14-33-12ZN) (a), CR (b), la classification des nuages (d), et l'indice d'aérosols (d) (Grenier et al., 2009) 16

1.7 (a) Carte de l'Alaska (b) Avion ≪Convair-580≫ du NRC utilisé pendant ISDAC (c) Quelques capteurs microphysiques du Convair-580 (sens horaire à partir du haut à gauche): 2DC, 2DP, 2DS, Fast-FSSP et CSI/CDP (http://acrf-campaign.arm.gov/isdac/). 24

2.1 Algorithm used to identify the phase (ice-, liquid- or mixed-phase cloud) of each 30-s period of in situ data. 35

2.2 Distribution of the temperature differences between the Rosemount 102 (T_{rs}) and the reverse flow temperature (T_{rf}) probes for all ice clouds defined in Table 2.1. 36

2.3 FSSP concentration as function of 2DS concentration (a), CDP concentration as function of 2DS concentration (b) (10-50 μm) for ice clouds defined in the Table 2.1 with T_a < -15 °C. 2DC concentration as function of 2DS concentration (c) (150-800 μm) for ice clouds defined in the Table 2.1. 40

2.4 Comparison of IWC (a,b), σ_{ext} (c,d) and R_{ei} (e,f) from combinations (1) 2DS for $N_{10<D<150\mu m}$, 2DC for $N_{150<D<800\mu m}$, 2DP for $N_{D>800\mu m}$ and (2) 2DS for $N_{10<D<800\mu m}$, 2DP for $N_{D>800\mu m}$ for ice clouds defined in the Table 2.1. 43

2.5 IWC (a), N_{ic} (b) and R_{ei} (c) as function of RH_{Ice} averaged over 2 % intervals. And RH_{Ice} as function of T_a averaged over 2.5-°C intervals (d), vertical lines represents the standard deviation. 46

2.6 Equivalent potential temperature (°C) with mean sea level pressure (hPa) (a) and geopotential ($m^2.s^{-2}$) at 500 hPa (b); module and direction of horizontal wind at 700 hPa (c) and vertical profile of flight F9 (in white full line) with equivalent potential temperature (K) and mixing ratio ($g.kg^{-1}$) over Alaska at 00:00:00 UTC (2 April 2008). A-Train overpass track (star line) is also shown at 22:37:14 UTC (1 April 2008). 50

2.7 Equivalent potential temperature (°C) with mean sea level pressure (hPa) (a) and geopotential ($m^2.s^{-2}$) at 500 hPa (b); module and direction of horizontal wind at 700 hPa (c) and vertical profile of flight F21 (in white full line) with equivalent potential temperature (K) and mixing ratio ($g.kg^{-1}$) over Alaska at 00:00:00 UTC (15 April 2008). A-Train overpass track (star line) is also shown at 22:06:30 UTC (14 April 2008) 51

2.8 Vertical profile of flight F21 (in white full line) with equivalent potential temperature (K) and vertical velocity ($Pa.s^{-1}$) over Alaska at 00:00:00 UTC (15 April 2008). 52

2.9 Averaged size distributions from 2DS, 2DC and 2DP probes for F9 (1 April 2008) in the time interval 23:13:43-23:32:10 UTC (in blue line) and for F21 (15 April 2008) in the time interval 00:55:26-01:14:58 UTC (in green line). 53

2.10 Relative humidity over ice as a function of temperature for ice clouds F9 and F21. Data are averaged over each 30-s and 2.5-°C interval. Symbol size represents $N_{ic,mean}$ and the bar color represents the $R_{ei,mean}$ of ice crystals from the combination 2 [2DS + 2DP]. 54

2.11 T_a and RH_{Ice} (a); N_{ic}(D) ($\text{Log}_{10}.\mu\text{m}^{-1}.\text{L}^{-1}$) as a function of ice crystal diameter (μm) from 2DS (10-800 μm) and 2DP (> 800 μm) (b) observed during F9. CPI images above show representative crystal shape and size to the corresponding altitude for the profile of F9 (1 April 2008) for the time interval 23:13:43-23:45:43 UTC. 57

2.12 Averaged N_{ic} (a), IWC (b), σ_{ext} (c) and R_{ei} (d) between combinations (1) and (2) with their associated standard deviation as a function of height for the ice cloud F9 (1 April 2008) - Data are averaged over each 30 sec period. 58

2.13 TIC1/2A observed on April 1st, 2008: Dardar Mask (a), total lidar attenuated backscatter (b) and radar reflectivity (c). 60

2.14 Classification TICs observed on April 1st, 2008 from the AWAC4 algorithm. 60

2.15 Latitude-Height representation of the synergistic Cloudsat radar and CALIPSO lidar retrieval of ice cloud properties: ice water content (a), visible extinction coefficient (b) and effective radius (c) for the April 1st, 2008 case. 62

2.16 T_a and RH_{Ice} (a); N_{ic}(D) ($\text{Log}_{10}.\mu\text{m}^{-1}.\text{L}^{-1}$) as a function of ice crystal diameter (μm) from 2DS (10-800 μm) and 2DP (> 800 μm) (b) observed during F21. CPI images above show representative crystal shape and size to the corresponding altitude for the profile of F21 (15 April 2008) for the time interval 00:55:26-01:17:24 UTC. 63

2.17 Averaged N_{ic} (a), IWC (b), σ_{ext} (c) and R_{ei} (d) between combinations (1) and (2) with their associated standard deviation as a function of height for the ice cloud F21 (15 April 2008) - Data are averaged over each 30 sec period. 64

2.18 Extended deep ice cloud between 03:00:00 UTC the April 14th, 2008 to 15:00:00 UTC the April 15th, 2008, shown by the MMCR Radar based at Barrow. 65

2.19 TIC2 observed on April 14th, 2008: Dardar Mask (a), total lidar attenuated backscatter (b) and Radar reflectivity (d). 66

2.20 Classification TICs observed on April 14th, 2008 from the AWAC4 algorithm. 67

2.21 Latitude-Height representation of the synergistic Cloudsat radar and CALIPSO lidar retrieval of ice cloud properties: ice water content (a), visible extinction coefficient (b) and effective radius (c) for the April 14th, 2008 case. 68

2.22 Average ice nuclei concentrations from the CFDC probe measured on the ambient inlet during clear-air conditions at water saturation between -10 % to +10 % (solid diamonds) with upper limit (open triangle) and lower limit (open inverse triangle). 70

2.23 Satellite measurements of SO_2 total columns by OMI on 1 April 2008 (a) and 15 April 2008 (b). 73

2.24 Représentation schématique des différents modes de nucléation (a), vue d'ensemble des températures versus sursaturation par rapport à la glace d'≪apparition≫ de la nucléation de la glace (b). Les sources des données sont listées dans Hoose and Möhler (2012). 77

3.1 Study Area: Alaska [195-220 °W; 60-72 °N – in gray] and Domains of potential SO_2 emission to Alaska used for the FLEXPART simulations; the north-eastern China Anthropogenic Emission [AE - in blue]; the south-eastern Russia Biomass Burning Emission [BBE - in green] and the Volcanic Emission [VE - in red] from the Kamchatka Peninsula and Aleutians. In red triangle, the position and name of active volcanoes during April 2008. 89

3.2 Daily variability of the area-averaged SO_2 total column above Alaska (Figure 3.1) from 27 March to 25 April 2008 based on an assumed SO_2 altitude between 5 to 10 km (TRM OMI L2G SO2 products). Vertical lines represents the standard deviation. Results should be considered preliminary estimate. 90

3.3 Mean geopotential ($m^2.s^{-2}$) at 850 hPa (contour) and 500 hPa (colorbar) from 27 March to 2 April (a), 3 to 9 April (b), 10 to 16 April (c) and 17 to 25 April (d), 2008. 91

3.4 Monthly mean SO_2 total column based on an assumed SO_2 altitude below 2 km (PBL OMI L3 SO2 products) over the northern hemisphere in April 2008. 92

3.5 Fire counts on April 2008 from the MODIS Aqua satellite instrument cloud- and overpass- corrected, over the northern hemisphere. 93

3.6 Mean SO_2 total column based on an assumed SO_2 altitude between 5 to 10 km (TRM OMI L2G SO_2 products) from 27 March to 2 April (a), 3 to 9 April (b), 10 to 6 April (c) and 17 to 25 April (d) 2008. 99

3.7 10-days backward-trajectories from FLEXPART simulations initialized on 1 April 2008 at 23:14:00 for boxes located at 71.4 °N, 156.3 °W at 6.75 km heigth [$B_{F9}1$] (a, b) and 4.25 km height [$B_{F9}2$]. Clusters of particles are represented every 24 hours from the beginning of the simulation. The colorbar represents the altitude of cluster in meters. Particles are released during one hour. 101

3.8 Calipso track sections (line) and FLEXPART air mass positions (∗) along FLEXPART trajectories initialized in the boxes $B_{F9}1$ and $B_{F9}2$ of Figures 3.7a and c. The color scale indicates the elapsed time in hours between the CALIPSO observation and the aircraft observation. 102

3.9 Dardar Mask track section observed on 31 March (a) at 13:50:00 UTC and on 30 March (b) at 13:05:00 UTC, 2008 from of the synergistic Cloudsat radar and CALIPSO lidar, with FLEXPART air masses ($B_{F9}1$ and $B_{F9}2$) positions (⋄). 104

3.10 (a) Total particulate backscatter coefficient at 532 nm (green) and 1064 nm (magenta); (b) particulate extinction coefficient at 532 nm (green) and 1064 nm (magenta); (c) Total particulate depolarization ratio at 532 nm (green) and the input values of dust (yellow) and anthropogenic (red) particles, (d) Separation of dust (yellow) and anthropogenic (red) particulate backscatter coefficients at 532 nm and (e) Vertical Feature Mask as given by CALIPSO from aerosols layer ($AL_{F9}2$) indicated in Figure 3.9. 107

3.11 10-days backward-trajectories from FLEXPART simulations initialized on 15 April 2008 at 01:16:00 UTC for boxes located at 71.5 °N; 156.6 °W at (a.b) 6.75 km in heigth [$B_{F21}1$]; (c.d) 5.75 km heigth [$B_{F21}2$] and (e.f) 4.25 km heigth [$B_{F21}3$]. Clusters of particles are represented every 24 hours from the beginning of the simulation. The colorbar represents the altitude of cluster in meters. Particles are released during one hour. 109

3.12 Calipso track sections (line) and FLEXPART air mass positions (∗) along FLEXPART trajectories initialized in the box $B_{F21}2$ of Figure 3.11c (left of the dashed line) and initialized in the box $B_{F21}3$ of Figure 3.11e (rigth of the dashed line). The color scale indicates the elapsed time in hours between the CALIPSO observation and the aircraft observation. 110

3.13 Dardar Mask track section observed on 13 April (a) at 23:01:00 UTC, on 12 April (b) at 14:18:00 UTC that intercept the FLEXPART air masses ($B_{F21}2$) in positions (⋄), and on 10 April at 13:00:00 UTC that intercept the FLEXPART air masses ($B_{F21}3$) in positions (⋄). 111

3.14 10-days backward-trajectories from FLEXPART simulations initialized on 12 April 2008 at 14:18:00 UTC for boxes $B_{F9}4$ located at 47.4 °N; 179.8 °W at 3.75 km in heigth (a) and $B_{F9}5$ located at 64.6 °N; -170.3 °W at 3.75 km in heigth (b). Clusters of particles are represented every 24 hours from the beginning of the simulation. The colorbar represents the altitude of cluster in meters. Particles are released during one hour. 112

3.15 (a) Total backscatter coefficient at 532 nm (green) and 1064 nm (magenta); (b) Particulate extinction coefficient at 532 nm (green) and 1064 nm (magenta); (c) Total particulate depolarization ratio at 532 nm (green) and the input values of dust (yellow) and anthropogenic (red) particles, (d) Separation of dust (yellow) and anthropogenic (red) backscatter coefficients at 532 nm and (e) Vertical Feature Mask as given by CALIPSO from aerosols layer ($AL_{F21}1$) indicated in Figure 3.13. 113

3.16 Average total column density SO_2 from 22 to 26 March 2008 from Level 2G daily gridded (0.125 x 0.125 °) OMI SO_2 products in the mid-troposphere (a) and 7-days forward trajectories from FLEXPART simulations initialized the 22 March 2008 at 12:00:00 UTC from Beijing in mid-tropophere. Clusters of particles are represented every 24 hours from the beginning of the simulation. The color bar represents the altitude of cluster in meters. Particles are released during one hour. 115

4.1 Distribution spatiale des profils de nuit (combinées: cloud free + above cloud) d'extinction des aérosols moyennés entre 5 et 8 km d'altitude à l'aide des données CALIOP de niveau 3 (a), Distribution spatiale de la colonne totale de SO_2 basée sur une altitude présumée entre 5 et 10 km d'altitude (TRM OMI L2G SO_2 products) (b), moyennée sur le mois d'avril 2008 au-dessus de l'Arctique. 120

4.2 Distribution spatiale des profils de nuit (combinées: cloud free + above cloud) d'extinction des aérosols moyennés sur différentes saisons et altitudes au-dessus de l'Arctique à l'aide des données CALIOP de niveau 3. 121

4.3 Cycle saisonnier de l'extinction des aérosols moyennée sur 5 jours pour la période de juin 2006 à mai 2012 à l'aide des données de niveau 2 de CALIPSO (profils de nuit et de jour) pour différents secteurs de l'Arctique (Di Pierro et al., 2012). 122

4.4 Variabilité inter-annuelle de l'extinction des aérosols moyennée sur 5 jours pour la période de juin 2006 à mai 2012 en fonction de l'altitude à l'aide des données de niveau 2 de CALIPSO (profils de nuit et de jour) au-dessus du cercle Arctique (Di Pierro et al., 2012). 123

4.5 Distribution spatiale de RH_{Water} (a), RH_{Ice} (b) et T_a (c) à 500 hPa moyennées sur le mois d'Avil 2008 avec les déviations standards associées (respectivement; d, e, f), à l'aide des réanalyses ECMWF au-dessus de l'Arctique. 124

4.6 Écarts de la pression au niveau de la mer (a) et de la hauteur du géopotentiel à 500 hPa (b) calculés sur la période du 30 mars au 22 avril 2008 par rapport à le moyenne climatologique au-dessus de l'hémisphère nord (Fuelberg et al., 2010). 125

4.7 Fréquence d'occurence des nuages d'eau liquide et de glace pour différentes saisons en fonction de la hauteur pour la période de juin 2006 à mai 2010 au-dessus du cercle Arctique, obtenue à l'aide des données CALIPSO (Devasthale et al., 2011) (a); Moyenne de la température de l'air pour différentes saisons en fonction de la hauteur pour la période de juin 2006 à mai 2010 au-dessus du cercle Arctique, obtenue à l'aide des données NCEP2 (b) - le rectangle bleu représente la zone comprises entre ∼5 et ∼8 km d'altitude. 126

A.1 Configuration de la constellation A-Train 138

A.2 Schéma optique du lidar CALIOP. 142

A.3 Classification des scènes atmosphériques par le modèle OPAC (Hess et al., 1998a, 1998b) à partir des valeurs du rapport de couleur CR en fonction du coefficient de rétrodiffusion β_{532} [km^{-1}.sr^{-1}]. 145

B.1 Point géographique (marqué d'une étoile sur la figure (a) et d'un trait tireté (b)) où sont relachées 2000 particules le long de la trajectoire d'avion, entre 1000 et 7500 mètres tous les 500 mètres, dans une zone de 0.5 x 0.5 ° pour le vol F21 du 15 avril 2008. 155

B.2 Rétrotrajectoires à partir des simulations FLEXPART initialisées le 15 avril 2008 à 01:16:00 UTC à 71.5 °N; 156.6 °W entre 5500-6000 m. Les clusters de particules sont représentés toutes les 24 h à partir du début de la simulation. La colorbar représente l'altitude des clusters en mètres. 155

C.1 Principe de mesure d'OMI (Levelt et Noordhoek, 2002). 158

C.2 Représentation schématique de la voie oblique (lignes rouges) de la lumière solaire à travers l'atmosphère de la Terre vers le satellite, associée à l'empreinte E (Surface de la terre pointée par le satellite). La ligne bleue représente la «colonne verticale» au-dessus de l'empreinte E 158

C.3 Spectre d'absorption des gaz O_3 et SO_2 dans la bande UV. Les lignes noires en pointillées représentent les quatre longueurs d'onde (310.8, 311.9, 313.2 et 314.4 nm) utilisées pour la restitution de la densité de SO_2 dans l'algorithme BRD. 160

LISTE DES TABLEAUX

Tableau Page

1.1 Résumé de la méthode de classification des TICs (Grenier et Blanchet, 2010). 17

1.2 Relations masse-diamètre, $m(D)$, de Mitchell et al. (1990) des particules de glace récoltées lors de tempêtes d'hiver au Sierra Nevada (Californie) en 1986-87. La première colonne donne la forme des particules de glace. La deuxième donne le nombre de particules de glace selon sa forme. La troisième colonne donne les coefficients de la relation puissance masse-diamètre avec m en mg et L ou D, le diamètre maximum des particules en mm. 20

2.1 Time and spatial coordinates of the ice cloud profiles selected by the algorithm of figure 2.1 for which the cloud temperature drops below -30±0.5 °C during the ISDAC measurement campaign. 37

2.2 Flight code, cloud top height and mean $\overline{N_{ic}}$ and $\overline{R_{ei}}$ for $RH_{Ice} > 100$ % of ice clouds of similar IWC (i.e. < 0.03 g.m^{-3}). 47

2.3 RH_{Ice}, N_{ic}, R_{ei} of ice clouds F9 and F21 averaged over each 2.5 °C period of air temperature, with their associated standard deviation. Values from the combination 2 (2DS+2DP) and from the combination 1 (2DS+2DC+2DP) are in black and gray respectively. 55

2.4 β_{att}, Z, R_e from VarCloud Algorithm of ice clouds F9 and F21 averaged between 71.0 to 71.5 °NN with their associated standard deviation, according to the normalized altitude. 67

3.1 List of days on which FLEXPART simulated 10-day froward trajectories from the north-eastern China AE domain reached the Alaskan domain, with the particles' fraction, travel time, altitude and date of arrival associated, from the end of March to the end of April, 2008. Total number of trajectories reaching Alaska = 4.3 %. 96

3.2 List of days on which FLEXPART simulated 10-day froward trajectories from the south-eastern Russia BBE domain reached the Alaskan domain, with the particles' fraction, travel time, altitude and date of arrival associated, from the end of March to the end of April, 2008. Total number of trajectories reaching Alaska = 13.1 %. 97

3.3 List of days on which FLEXPART simulated 5-day forward-trajecotires from the VE domain reached the Alaskan domain, with the particles' fraction, travel time, altitude and date of arrival associated, from the end of March to the end of April, 2008. Total number of trajectories reaching Alaska = 32.3 %. 98

3.4 T_a, $\beta_a tt$, Z, IWC, R_e and IWC/R_e from VarCloud Algorithm of different ice cloud layers defined in Figures 9 and 12 with their associated standard deviation, according to the normalized altitude. 100

3.5 Aerosol layer characteristics defined in previous Figures from the CALIOP lidar observations. 105

C.1 Coefficients d'absorption selon les différentes pairs de λ. 160

LISTE DES ABRÉVIATIONS, SIGLES ET ACRONYMES

2DC	Two Dimensional Cloud probe
2DP	Two Dimensional Precipitation probe
2DS	Two Dimensional Stereo probe
ACIA	Arctic Climate Impact Assessment
AE	Anthropogenic Emission
AL	Aerosol Layer
AMS	Aerosol Mass Spectrometer
API	Année Polaire Internationale
ARCPAC	Aerosol, Radiation, and Cloud Processes affecting Arctic Climate
ARCTAS	Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites
AVO	Alaska Volcano Observatory
AWAC4	Arctic Winter and Cloud Classification from CloudSat and CALIPSO
AZS	Angle Zenithal Solaire
BBE	Biomass Burning Emission
CALIOP	Cloud-Aerosol LIdar with Orthogonal Polarization
CALIPSO	Cloud-Aerosol Lidar et Infrared Pathfinder Satellite Observation
CCN	Cloud Condensation Nuclei
CFDC	Continuous Flow Diffusion Chamber
CIP	Cloud Imaging Probe
CPC	Condensation Particle Counter
CPI	Cloud Particle Imager
CRF	Cloud-Radiative Forcing
DMS	Dimethyl Sulfide
DMT	Droplet Measurement Technologies

DOE-ARM	Department Of Energy-Atmospheric Radiation Measurement
DU	Dobson Units
ECMWF	European Center for Medium-Range Weather Forecast
EOS-Aura	Earth Observing System - Aura
FSSP	forward scattering spectrometer probe
GES-DISC	Goddard Earth Sciences - Data and Information Services Center
GIOVANNI	GES-DISC Interactive Online Visualization ANd aNalysis Infrastructure
IC	Ice Cloud
IIR	Imageur InfraRouge
IN	Ice Nuclei
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
IRT	InfraRouge Thermique
ISDAC	Indirect and Semi-Direct Aerosols Campaign
KVERT	Kamchatka Volcanic Eruption Response Team
LIDAR	LIght Detection And Ranging
LPDM	Lagrangian Dispersion Particle Model
LUT	Look-Up Table
MMRC	MilliMeter Cloud Radar
MODIS	MODerate resolution Imaging Spectroradiometer
MP	Mixed-Phase
M-PACE	Mixed-Phase Arctic Cloud Experiment
NAA	North American Arctic
NASA	National Aeronautics and Space Administration
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
NRC	National Research Council of Canada
NSA	North Slope of Alaska
OAP	Optical Array Probes
OMI	Ozone Monitoring Instrument
PBL	Planetary Boundary Layer

PCASP	Passive Cavity Aerosol Spectrometer Probe
PMS	Particle Measuring Systems
POLARCAT	Polar Study using Aircraft, Remote Sensing, Surface Measurements and Models, of Climate, Chemistry, Aerosols, and Transport
PSD	Particle Size Distribution
RADAR	RAdio Detection And Ranging
RDES	Rétroaction - Déshydratation - Effet de Serre
RID	Rosemont Icing Detector
SCD	Slant Column Density
SHEBA	Surface Heat Budget of the Arctic ocean project
SIFI	Sulphate-Induced Freezing Inhibition
SPEC	Stratton Park Engineering Company
SPLAT	Single Particle Laser Ablation Time of flight mass spectrometer
STL	STratosphere Low
TIC	Thin Ice Cloud
TRL	TRoposphere Low
TRM	TRoposphere Mid
UTC	Universal Time Coordinated
UV	Ultra-Violet
VCD	Vertical Column Density
VE	Volcanic Emission

LISTE DES SYMBOLES

$A(D)$	Distribution de l'air des particules pour chaque classe de diamètre D (m^{-2})
CR_{att}	Rapport de couleur total atténué
CR_p	Rapport de couleur particulaire
D	Diamètre des cristaux de glace (μm)
dV_R/dt	Variation du taux de tension de la sonde RID ($mV.s^{-1}$)
H_2O_2	Peroxyde d'Hydrogène
H_2SO_4	Acide Sulfurique
IWC	Contenu en glace ($g.m^{-3}$)
LWC	Contenu en eau liquide ($kg.m^{-3}$)
$m(D)$	Distribution de la masse des particules pour chaque classe de diamètre D ($kg.m^{-4}$)
N_a	Concentration en nombre des aérosols (m^{-3})
NH_3	Ammoniac
$(NH_4)HSO_4$	Bisulfate d'Ammonium
$(NH_4)_2SO_4$	Sulfate d'Ammonium
N_{ic}	Concentration en nombre des cristaux de glace (m^{-3})
$n(D)$	Distribution Dimensionnelle des Particules (m^{-4})
O_3	Ozone
OH	Radical Hydroxyle
R_e, R_{ei}	Rayon effectif des cristaux de glace (μm) calculé respectivement à partir des données satellitaires, et aéroportées
RH_{Ice}	Humidité relative par rapport à la glace (%)
RH_{Water}	Humidité relative par rapport à l'eau liquide (%)
r	Rapport de Mélange ($g.kg^{-1}$)
SO_2	Dioxyde de sulfate

SO_4^{2-}	Sulfate
T_a	Température de l'air (K ou °C)
TWC	Contenu en eau totale (g.m^{-3})
$v(D)$	Distribution du volume des particules pour chaque classe de diamètre D (m^{-1})
w	Vitesse verticale (m.s^{-1})
Z	Réflectivité radar (mm^6.m^{-3})
β_{att}	Coefficient de rétrodiffusion total atténué (m^{-1}.sr^{-1})
β_p	Coefficient de rétrodiffusion particulaire (m^{-1}.sr^{-1})
σ	Déviation standard
$\sigma_e xt$	Coefficient d'extinction (km^{-1})
δ_v	Rapport de dépolarisation volumique à 532 nm (%)
δ_p	Rapport de dépolarisation particulaire à 532 nm (%)
λ	Longueur d'onde (nm)
ρ	Densité de l'espèce (kg.m^{-3})
$\theta - e$	Température potentielle équivalente (°C ou K)

RÉSUMÉ

Les mécanismes de formation des nuages de glace arctiques durant la nuit polaire sont encore mal définis en raison de l'absence d'observations et de l'éloignement de cette région. Pourtant, leur influence sur les conditions météorologiques et sur le climat dans l'hémisphère nord est d'une importance primordiale; et les connaissances sur la modification de leurs propriétés, liées à des processus d'interaction aérosol-nuage, doivent être améliorées.

Les fortes concentrations d'aérosols en Arctique durant la nuit polaire sont associées au transport des aérosols anthropiques des latitudes moyennes jusqu'au pôle Nord. Les observations et les modèles montrent que cela peut conduire à un transport important de particules d'aérosol acidifiées. Les mesures en laboratoire et in situ montrent qu'à basse température ($<$ -30 °C), le revêtement d'acide sur les noyaux glaçogènes (IN) peut réduire leurs propriétés de nucléation de la glace. Par conséquent, leur concentration est réduite dans ces régions entraînant une plus faible concentration de plus gros cristaux de glace en raison d'une diminution de la compétition pour une humidité disponible similaire.

De nombreuses mesures de terrain et par télédétection par satellite (CloudSat et CALIPSO) révèlent l'existence de deux types de nuages de glace (TIC) en Arctique durant la nuit polaire. Les nuages de glace de type 1 (TIC-1) ne sont visibles que par le lidar tandis que les nuages de glace de type 2 (TIC-2) sont perçus à la fois par le lidar et le radar. Les TIC-2 sont divisés en TIC-2A et TIC-2B. Les TIC-2A sont recouverts d'une fine couche de petits cristaux de glace non-précipitant (invisible par le radar) (TIC-1), tandis que les TIC-2B ne le sont pas. Ils sont caractérisés par une faible concentration de gros cristaux de glace. On suppose que la microstructure des TIC-2B est liée à l'acidification des aérosols. Pour vérifier cette hypothèse, des études de cas et des approches statistiques ont été combinées afin d'analyser le transport des aérosols et les propriétés des nuages de glace en Arctique.

La première partie de la thèse enquête sur les propriétés microphysiques des TIC-1/2A et TIC-2B, en analysant des mesures aéroportées et satellitaires de cas spécifiques observés durant la campagne de mesures ISDAC (Alaska, Avril 2008). Pour la première fois, les microstructures des TIC-1/2A et TIC-2B en Arctique sont comparées en utilisant les observations in-situ des nuages. Les résultats montrent que les différences entre eux sont confinées dans la partie supérieure du nuage, où se produit la nucléation de la glace. Les TIC-2B sont caractérisés par une plus faible concentration ($<$ 10 L^{-1}) de plus gros cristaux de glace ($>$ 110 μm), une plus grande sursaturation par rapport à la glace ($>$ 15 %) et une plus faible concentration de IN ($<$ 2 ordres de grandeur), comparés

aux TIC-1/2A. La croissance des cristaux de glace dans les TIC-2B semble «explosive» alors qu'elle semble plus «progressive» au sommet des TIC-1/2A. On suppose que ces différences sont liées à la concentration en nombre et à la composition chimique des aérosols.

La deuxième partie de la thèse enquête sur l'origine des masses d'air formant deux cas spécifiques de TICs ISDAC: TIC-1/2A (1 Avril 2008) et TIC-2B (15 Avril 2008), en utilisant des outils de trajectoire et des données satellitaires. Les résultats montrent que les conditions synoptiques favorisent le transport de masses d'air en provenance de trois zones d'émissions potentielles de SO_2 jusqu'en Alaska: l'est de la Chine et de la Sibérie, où des émissions anthropiques et de combustion de biomasse sont respectivement produites et la région volcanique du Kamtchatka et des Îles Aléoutiennes. Les conditions météorologiques permettent l'accumulation de polluants provenant de l'est de la Chine/Sibérie au-dessus de l'Alaska, avec probablement une forte contribution d'aérosols volcaniques acides au cours de la période du TIC-2B. Les observations OMI indiquent que les concentrations de SO_2 dans les masses d'air formant le TIC-2B sont plus grandes que dans les masses d'air formant le TIC-1/2A. Des mesures aéroportées confirment une acidité élevée à proximité du TIC-2B où l'humidité est faible. Ces résultats appuient l'hypothèse que le revêtement acide sur les IN pourraient-être à l'origine de la formation du TIC-2B.

Le taux de croissance des cristaux de glace, dans des conditions d'air très froid, impacte sur l'efficacité de la précipitation, la déshydratation et le bilan radiatif. Ces résultats représentent une première étape essentielle et importante qui relie les précédentes études de modélisation, de télédétection et en laboratoire, avec des observations in-situ des TICs.

Mots-clés: Nuages de glace arctiques, particules d'aérosol, mesures aéroportées et satellitaires.

ABSTRACT

Arctic ice cloud formation during winter is poorly understood mainly due to the lack of observations and the remoteness of this region. Yet, their influence on Northern Hemisphere weather and climate is of paramount importance, and the modification of their properties, linked to aerosol-cloud interaction processes, needs to be better understood.

Large concentration of aerosols in the Arctic during winter is associated to long-range transport of anthropogenic aerosols from the mid-latitudes to the Arctic. Observations and models show that this may lead to a significant transport of acidified aerosol particles. Laboratory and in-situ measurements show that at cold temperature ($<$ -30 °C), acidic coating may reduce the ice nucleating properties of ice nuclei (IN). Therefore, the IN concentration is reduced in these regions, resulting to a smaller concentration of larger ice crystals and because of the reduced competition for the same available moisture.

Extensive measurements from ground-based sites and satellite remote sensing (CloudSat and CALIPSO) reveal the existence of two Types of Ice Clouds (TICs) in the Arctic during the polar night and early spring. The first Type of Ice Clouds (TIC-1) are visible only by the lidar while the second Type of Ice Clouds (TIC-2) are detected by both the lidar and radar. TIC-2 are divided into TIC-2A and TIC-2B. TIC-2A are topped by a cover of non-precipitating very small (radar-unseen) ice crystals (TIC-1), while TIC-2B are not. They are characterized by a low concentration of large ice crystals. It is hypothesized that the observed low concentration of large ice crystals, leading to precipitation (e.g. cloud regime TIC-2B), is linked to the acidification of aerosols. To check this, we are combining case studies and statistical approaches to analyse aerosol transport and cloud properties in the Arctic.

The first part of the thesis investigate the microphysical properties of TIC-1/2A and TIC-2B, analysing airborne in-situ and satellite measurements of specific cases observed during the ISDAC campaign (Alaska, April 2008). For the first time, Arctic TIC-1/2A and TIC-2B microstructures are compared using in-situ cloud observations. Results show that the differences between them are confined in the upper part of the clouds where ice nucleation occurs. TIC-2B were characterized by fewer ($<$ 10 L^{-1}) and larger ($>$ 110 μm) ice crystals, a larger ice supersaturation ($>$ 15 %) and a fewer ice nuclei (IN) concentration ($<$ 2 order of magnitude) when compared to TIC-1/2A. Ice crystal growth in TIC-2B clouds seems explosive whereas it seems more gradual in TIC-1/2A. It is hypothesized that these differences are linked to the number concentration and the chemical composition of aerosols.

The second part of the thesis investigate the origin of air masses forming two specific cases; TIC-1/2A (1 April 2008) and TIC-2B (15 April 2008), using trajectory tools and satellite data. Results show that the synoptic conditions favor air masses transport from the three potentials SO_2 emission areas to Alaska: eastern China and Siberia where anthropogenic and biomass burning emission respectively are produced and the volcanic region from the Kamchatka/Aleutians. Weather conditions allow the accumulation of pollutants from eastern China/Siberia over Alaska, most probably with the contribution of acid volcanic aerosol during the TIC-2B period. OMI observations reveal that SO_2 concentrations in air masses forming the TIC-2B were larger than in air masses forming the TIC-1/2A. Airborne measurements show high acidity near the TIC-2B flight where humidity was low. These results support the hypothesis that acidic coating on IN could be at the origin of the formation of TIC-2B.

The ice crystal growth rate in very cold conditions impinges on the precipitation efficiency, dehydration and radiation balance. These results represent an essential and important first step to relate previous modeling, remote sensing and laboratory studies with TICs cloud in-situ observations.

Keywords: Arctic ice clouds, aerosol particles, airborne and satellite measurements

CHAPITRE I

ARCTIQUE: LABORATOIRE NATUREL POUR L'ÉTUDE DES INTERACTIONS NUAGE DE GLACE - AEROSOL - RAYONNEMENT

1.1 L'Arctique: une région clé pour la surveillance des changements climatiques

1.1.1 Intérêt scientifique

Dans le contexte actuel de crise environnementale, dont le changement climatique est une des principales manifestations, la recherche scientifique dans les régions polaires s'est intensifiée ces dernières années. Le plus ambitieux programme de recherche a été mené dans le cadre de l'Année Polaire Internationale (API ou IPY en anglais) entre les années 2007 et 2009. Il a permis de constituer une importante base de données à travers de nombreuses campagnes de mesures et de mettre en évidence les bouleversements engendrés par les changements climatiques dans les régions polaires.

Ces changements climatiques, dont l'un des facteurs dominants est l'augmentation des gaz à effets de serre dans l'atmosphère, sont particulièrement sensibles en Arctique (IPCC, 2007; ACIA, 2005). Au cours de la dernière décennie, le réchauffement a augmenté d'un facteur 3 dans cette région par rapport au réchauffement moyen global (Hansen et al., 2010). Les observations satellitaires montrent une tendance au réchauffement depuis les années 70, excepté au-dessus de certaines zones où la température tend à se refroidir, comme au-dessus de la Mer de Bering et en Sibérie (Figure 1.1) durant les saisons hivernales (Serreze et Francis, 2006). Tous les modèles climatiques s'accordent à prévoir une continuation de cette forte tendance au réchauffement au niveau du pôle Nord, avec les plus grands changements à venir pendant les saisons froides (Chapman et Walsh, 2007).

Malgré son éloignement, la région arctique n'est pas isolée du reste de la planète et

Figure 1.1 Carte de l'Arctique (http://geology.com/world/arctic-ocean-map.shtml).

les changements qu'elle subit actuellement auront des impacts sur le système climatique global. L'Arctique, tout comme l'Antarctique, agit comme régulateur thermique à l'échelle planétaire. L'étude de son évolution très rapide va déterminer, dans les décennies à venir, la manière dont nous appréhendons les régions polaires, le climat et le changement climatique.

1.1.2 Atmosphère Arctique

Le front polaire constitue une zone de fort gradient horizontal de température et marque le contact entre les masses d'air froid d'origine polaire et les masses d'air chaud d'origine tropicale. Des courant-jets, circulant d'ouest en est dans la haute troposphère, sont ainsi créés à ces latitudes par ce gradient thermique qui est particulièrement important en hiver et aux interfaces terre-océan. Ces courant-jets constituent le milieu favorable aux cycles d'évolution des dépressions et tempêtes qui croissent par ce qu'on appelle l'instabilité barocline. Le front polaire n'est pas symétrique zonalement et peut s'étendre jusqu'à environ 40 °N de latitude en hiver ce qui rend les pôles d'émission situés au nord du front polaire, des sources majeures de polluants.

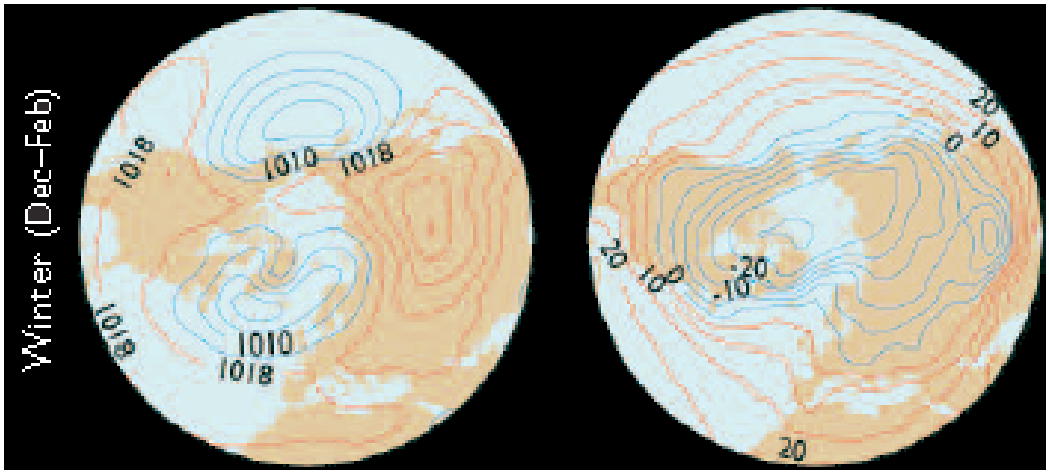

Figure 1.2 Moyenne saisonnière de (a) la pression au niveau de la mer (hPa) (les contours bleus indiquent les pressions < 1014 hPa) et de (b) la température de l'air en surface (les contours bleus indiquent des températures < 0 °C), dans l'hémisphère nord en hiver (ACIA, 2005).

Ce schéma de circulation atmosphérique générale est aussi influencé par d'autres facteurs tels que la circulation stable des courants marins entraînant des systèmes atmosphériques semi-permanents. La circulation moyenne au niveau de la mer, représentative de l'hiver en Arctique, est dominée par l'anticyclone sibérien au-dessus du centre-est de l'Asie, la dépression islandaise au-dessus de la côte sud-est du Groenland et la dépression des Aléoutiennes dans le bassin du Pacifique Nord (Figure 1.2). Durant la saison froide, l'absence quasi totale du rayonnement solaire entraîne des épisodes d'inversion de températures en surface conduisant à une stratification verticale thermique très stable, et ainsi limitant le mélange vertical et le dépôt sec (Stohl, 2006). L'extrême sécheresse de la troposphère arctique minimise aussi le dépôt humide et permet donc une longue durée de vie des aérosols et de certains gaz en hiver d'où l'apparition de la brume arctique (voir section 1.3.1). Au fur et à mesure que l'on avance dans la saison, les aérorols s'accumulent et se retrouvent à des altitudes plus élevées en s'écoulant suivant les isentropes (lignes de température potentielle constante) qui s'élèvent doucement vers le centre de l'Arctique (Raatz, 1991; Quinn et al, 2007). Le transport isentropique (ou laminaire) peut, à tout moment, être compromis en présence de vents forts ou de réchauffement en surface dû à l'effet de serre des nuages.

1.2 Les nuages de glace arctiques: rôle et formation

1.2.1 Rôle des nuages de glace dans le climat arctique

Les signes du réchauffement climatique arctique sont connus. En revanche, son amplitude et son évolution sont largement incertaines. Ces incertitudes sont en partie liées au manque de connaissances sur la contribution des nuages au bilan énergétique dans cette région. Les rétroactions nuageuses ont été reconnues comme une source majeure d'incertitudes dans les estimations de la sensibilité du climat à partir des modèles climatiques globaux (Dufresne et Bony, 2008). Les nuages jouent un rôle fondamental (1) dans la régulation du bilan radiatif en influençant à la fois le rayonnement solaire et le rayonnement infrarouge thermique à la surface et au sommet de l'atmosphère et (2) dans la modulation des cycles hydrologiques par la conversion de la vapeur d'eau aux particules liquides et solides.

À partir de mesures de télédétection au sol, Shupe et al. (2011a) ont estimé une fraction nuageuse mensuelle de l'ordre de 58 à 83 % entre l'hiver et l'été au dessus des six sites d'observation arctiques de Barrow, Atqasuk (Alaska), SHEBA, Eureka (Canada), Ny'Alesund (Norvège), et Summit (Groënland). Kay et L'Ecuyer (2012) ont récemment effectué une climatologie Arctique sur 11 ans (2000-2011) à partir d'observations satellitaires. Ils estiment une fraction nuageuse annuelle de l'ordre de 68 ± 15 %. Au sommet de l'atmosphère, l'effet radiatif net des nuages arctiques est un réchauffement durant la nuit polaire (Octobre-Mars) et un refroidissement durant le jour polaire (Avril-Septembre). La durée de l'influence des nuages arctiques au refroidissement (Mai-Août) est deux mois plus courte en surface, qu'au sommet de l'atmosphère (Avril-Septembre). L'effet radiatif net des nuages est plus important dans l'Atlantique Nord en raison d'une importante fraction nuageuse et de la depression islandaise semi-permanente, tandis qu'il est moins important au nord de l'Alaska sous l'anticyclone semi-permanant au-dessus de la mer de Beaufort où la couverture nuageuse reste faible.

Shupe (2011b) remarque aussi que les nuages composés uniquement de glace sont plus fréquents que les nuages en phase mixte avec une longévité similaire, basé sur des statistiques de moyennes-annuelles effectuées au dessus de trois sites d'observations (Barrow, Eureka, SHEBA). Les faibles températures et les valeurs relativement élevées d'humidité spécifique durant les saisons froides font de l'Arctique un environnement très propice à la formation des nuages de glace (Wyser et Jones, 2005), aussi bien dans la haute que dans la basse troposphère (Devasthale et al., 2010; Shupe, 2011b).

De récentes études montrent que les nuages de glace arctiques subvisibles (Lampert et al., 2009) et les ≪Diamond Dust≫ (Intrieri et Shupe, 2004) ont un effet négligeable sur le bilan radiatif en surface. Cependant leur existence pourrait être importante dans cette région (1) en influençant l'évolution des nuages en phase-mixte de bas niveau (Morrison et al., 2005; 2012), ou (2) en hiver, lorsque le réchauffement résultant du forçage radiatif tellurique des nuages n'est pas compensé par le refroidissement résultant de l'≪effet parasol des nuages (solaire)≫ (Girard et Blanchet, 2001; Shupe et Intrieri, 2004). Les ≪Diamond Dust≫ ou ≪Poussière de Diamant≫ font référence à des cristaux de glace qui se forment fréquemment dans la troposphère polaire, dans des conditions de ciel clair.

Le forçage radiatif du nuage en surface dépend fortement des quantités intégrées verticalement (phase, contenu en eau, épaisseur optique), de la taille et de la forme des cristaux, de la température et de la hauteur du nuage, ainsi que de l'angle zénithal solaire (AZS), et de l'albédo de surface (Shupe et Intrieri, 2004). La compréhension des processus microphysiques et radiatifs qui influencent l'évolution du nuage est une étape indispensable à la caractérisation des interactions nuage-rayonnement.

1.2.2 Microphysique des nuages de glace

La formation de la phase liquide ou solide dans un nuage est le résultat de la nucléation. La nucléation est un processus de changement de phase au cours duquel la matière acquiert un plus grand degré d'organisation moléculaire. L'apparition de gouttelettes d'eau ou de cristaux de glace suite à un refroidissement ne s'effectue pas de manière spontanée. Le passage à un état moléculaire plus organisé nécessite un apport d'énergie. La nucléation homogène, comme la formation de gouttelettes d'eau à partir de vapeur d'eau, requiert une humidité relative dans le nuage très élevée qui ne se produit pas dans des conditions atmosphériques normales. La nucléation homogène des gouttelettes d'eau est donc impossible dans l'atmosphère. Par contre le gel homogène des cristaux de glace à partir de gouttelettes d'eau est théoriquement possible pour des températures inférieures à -37 °C (Pruppacher et Klett, 1997). Dans un nuage de glace, il n'est pas rare de trouver de l'eau liquide surfondue en petite quantité. Cette eau dont la température est inférieure à 0 °C, se trouve alors dans un état métastable et la moindre perturbation (contact par exemple) provoque sa solidification.

L'apport d'un agent externe ayant pour effet de réduire l'énergie à fournir à la nucléation est donc nécessaire; les aérosols. Ce support matériel est appelé noyau de condensation (CCN en anglais pour Cloud Condensation Nuclei) pour les gouttelettes d'eau et noyau

glaçogène (IN en anglais pour Ice Nuclei) pour les cristaux de glace. Les IN contiennent à leur surface des sites actifs (surface non régulière et/ou impuretés de composition chimique différente) dont la structure cristalline est compatible avec celle de la glace. En général, la capacité d'un aérosol à initier le gel croît avec sa taille (Welti et al., 2009).

Il existe plusieurs modes de formation d'un cristal de glace, dont les plus connus sont le *gel homogène* (cité précédemment), la *nucléation par déposition*, le *gel par immersion*, le *gel par condensation* et le *gel par contact* (Pruppacher et Klett, 1997). Ces différents modes de formation de la glace sont illustrés dans la figure 1.3. La *nucléation par déposition* définit la formation d'un embryon de glace sur la surface d'un IN solide ou partiellement immergé dans une solution aqueuse à partir d'apport de vapeur d'eau. Le *gel par immersion* définit la formation de glace sur la surface d'un IN immergé dans une solution aqueuse ou dans une gouttelette d'eau surfondue. Le *gel par condensation* définit la formation de glace sur la surface d'un IN après avoir permis la condensation (i.e. lorsque la gouttelette d'eau s'active). Le *gel par contact* se produit lorsqu'une gouttelette d'eau surfondue entre en contact avec un IN puis gèle instantanément. La *nucléation par déposition* se produit lorsque l'environnement est à la fois sous-saturé par rapport à l'eau liquide et sursaturé par rapport à la glace; alors que les trois autres modes nécessitent une humidité relative plus élevée, c'est-à-dire un environnement sursaturé par rapport à l'eau liquide. L'importance relative de chacun de ces processus de nucléation des cristaux de glace au sein des nuages glacés est encore très incertaine.

Trois principaux processus permettent d'expliquer l'accroissement en taille des cristaux de glace. Le *processus de déposition* est le grossissement des cristaux de glace par diffusion de vapeur d'eau sur leur surface, dans une atmosphère sursaturée par rapport à la glace. Les cristaux de glace peuvent également grossir par collision entre eux, c'est le *processus d'agrégation*, pouvant ainsi entraîner une diminution de leur concentration en nombre. Au contraire, si l'environnement est assez turbulent, les chocs entre particules peuvent les casser, augmentant ainsi leur nombre. Les cristaux de glace peuvent également croître par collision avec des gouttelettes d'eau surfondues qui gèlent instantanément à la surface du cristal. Ce mécanisme de croissance est appelé le *givrage*. Lorsque les cristaux de glace ont atteint une taille limite et en fonction de la densité et de la viscosité de l'air, ils commencent à précipiter.

Une simple observation montre que les cristaux de glace apparaissent dans une grande variété de formes. La température ainsi que l'humidité relative contrôlent les caractéristiques principales de croissance des cristaux de glace. Le consensus entre les

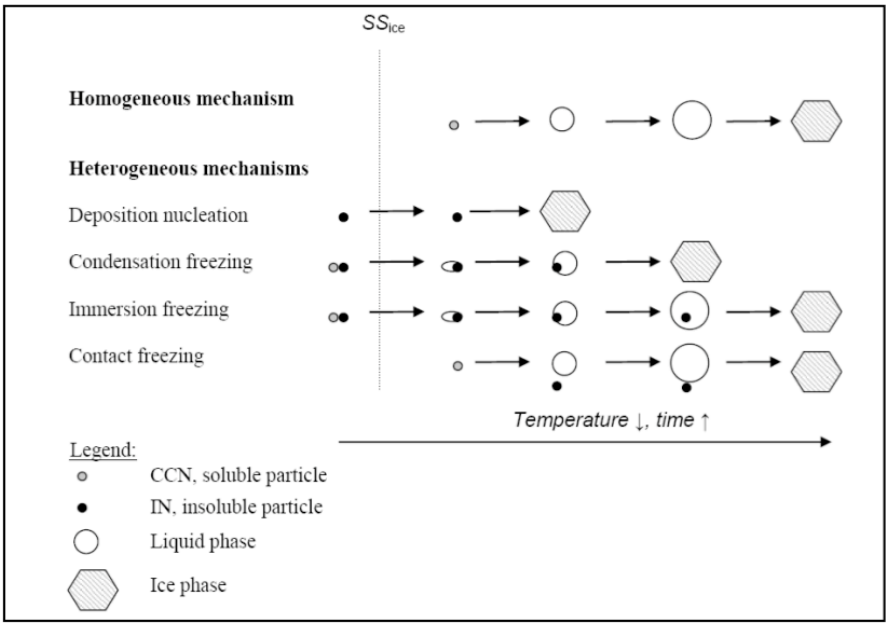

Figure 1.3 Représentation schématique des différents modes de nucléation des cristaux de glace (Dymarska, 2005).

observations en laboratoire et in-situ a permis à Bailey et Hallett (2009) de définir un diagramme détaillé décrivant les formes des cristaux de glace atmosphériques en fonction de la température et de la sursaturation par rapport à la glace. Le nouveau diagramme, présenté dans la figure 1.4, diverge des diagrammes précédents (Pruppacher et Klett, 1997) au niveau des basses températures. Il révèle que la forme des cristaux est dominée par des polycristaux de formes variées avec deux régimes distincts basés sur des formes type «plaque» entre -20 et -40 °C et type «colonne» entre -40 et -70 °C. Le nouveau diagramme souligne également que la majorité des cristaux sont de forme complexe et irrégulière et que les monocristaux (plaques et colonnes) sont les plus communs dans un environnement de faible sursaturation par rapport à la glace.

Nous avons vu que la compréhension des processus microphysiques et radiatifs qui influencent l'évolution du nuage est une étape indispensable à la caractérisation des interactions nuage-rayonnement. Cependant, afin de mieux comprendre ces interactions, la prise en compte des aérosols est indispensable. Ces fines particules en suspension dans l'atmosphère ont la capacité d'influencer indirectement le bilan radiatif de l'Arctique en modifiant les propriétés microphysiques et optiques des nuages.

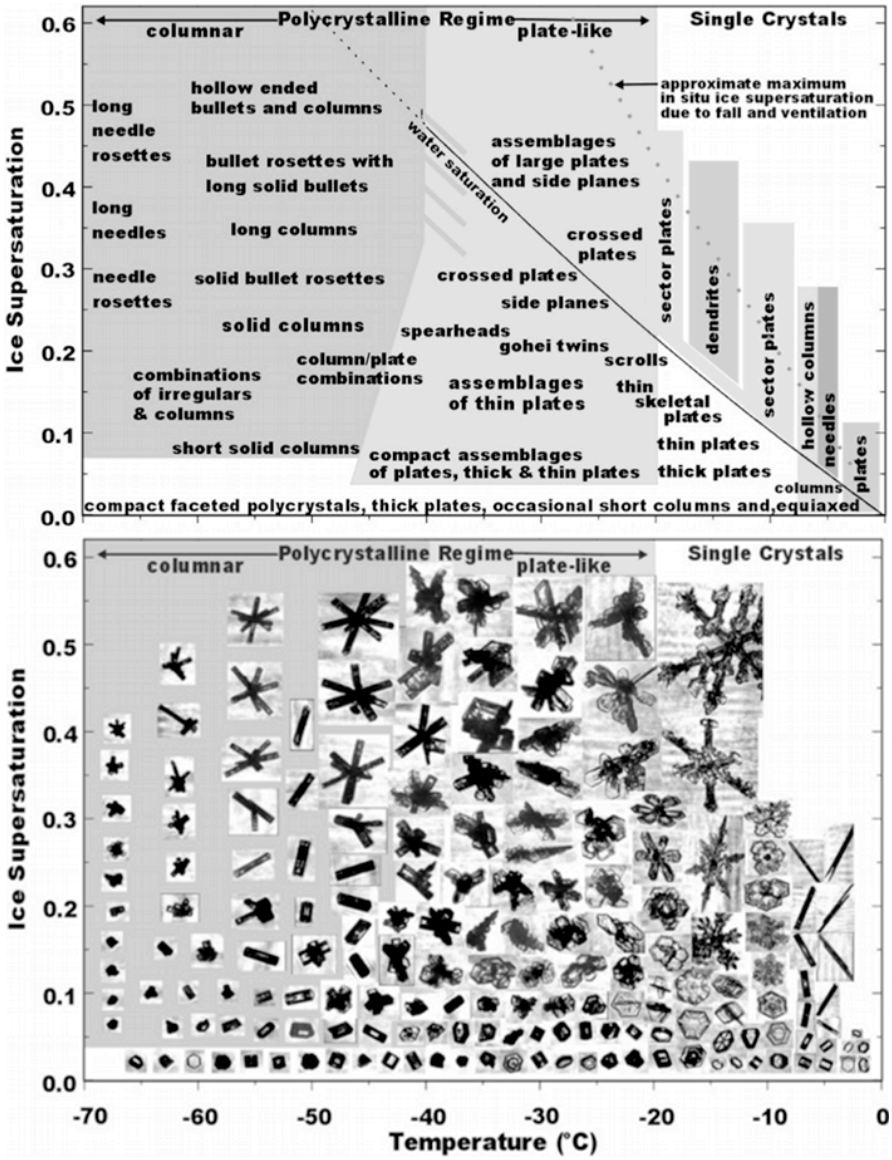

Figure 1.4 Diagramme de morphologie des cristaux de glace atmosphériques provenant de résultats en laboratoire (Bailey et Hallett, 2004) et d'images CPI de différentes campagnes de mesure (Bailey et Hallett, 2009).

1.3 Effet indirect des aérosols sur les nuages de glace

1.3.1 Les aérosols en Arctique: Pollution transfrontière au goût acide

Il est maintenant admis qu'il n'en est rien de l'idée reçue selon laquelle les régions polaires possèdent un air particulièrement pur; au moins au pôle Nord. La pollution atmosphérique émise dans les latitudes moyennes se rend jusque dans cette région et forme dans l'air arctique une brume très étendue, connue sous le nom de brume arctique. La présence de cette brume a été rapportée dès les années 50, et est particulièrement prépondérante en hiver et au printemps (Law et Stohl, 2007). Elle résulte principalement du transport à longue distance d'un mélange de sulfate et d'acide sulfurique (Sirois et Barrie, 1999), et dans une moindre mesure, de nitrates, de suie et d'autres composés issus de l'activité industrielle aux latitudes moyennes, accompagné de poussières et de particules organiques partiellement naturelles (Law et Stohl, 2007; Hirdman et al, 2010). Au début du mois d'avril, les couches de sulfate en surface commencent à se dissiper en raison de l'apparition du rayonnement solaire et ainsi, des mélanges verticaux près de la surface (Quinn et al, 2007). Le retour de la lumière permet aussi par réaction photochimique d'oxyder le dioxyde de soufre (SO_2) en sulfate, pouvant ainsi expliquer les concentrations maximales de sulfates en avril (Sirois et Barrie, 1999).

Selon les observations satellitaires, le nord-est de l'Amérique du Nord, le nord-est de l'Europe, la Chine ainsi que la région de Norilsk en Russie révèlent clairement de fortes concentrations de SO_2 (précurseur du sulfate), en raison d'un bon nombre de centrales à charbon, de fonderies et d'une importante consommation de combustibles fossiles dans ces régions (Khokhar et al., 2005). Jusqu'au milieu du 20ème siècle, les émissions globales ont été dominées par l'Europe et l'Amérique du Nord. Depuis, les émissions provenant d'autres régions, en particulier d'Asie, ont augmenté d'environ 40 % des émissions mondiales jusqu'en 2005 (Smith et al., 2011). La figure 1.5 présente les tendances annuelles des émissions anthropiques de SO_2 par région de 1850 à 2005 estimées à partir d'inventaires des émissions de SO_2 (Smith et al., 2011).

La croissance des émissions de SO_2 en Chine, par exemple, a commencé à ralentir en 2005, et diminuée après 2006, principalement en raison de l'application des dispositifs de désulfuration des gaz de combustion dans les centrales électriques. Cependant, il convient de noter que les émissions de SO_2 provenant de la combustion de charbon industriel a considérablement augmenté ces dernières années, en raison de l'augmentation de la consommation de charbon et le faible taux d'application des techniques de contrôle

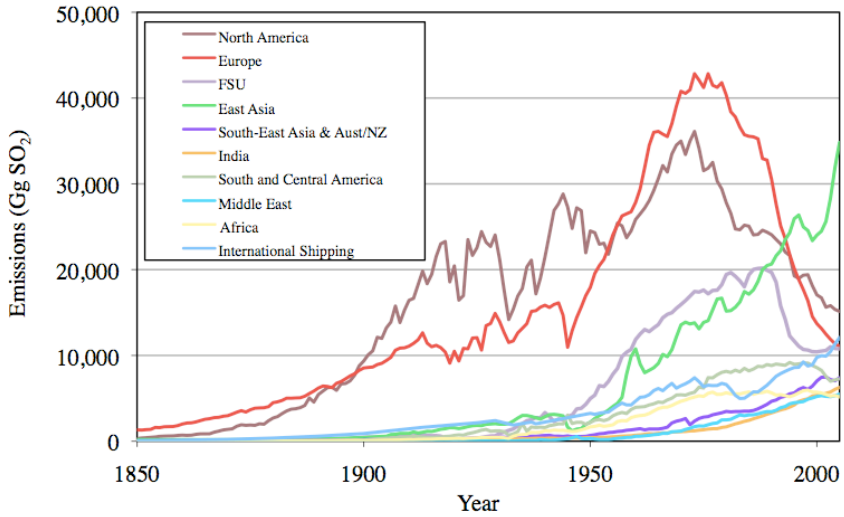

Figure 1.5 Tendances annuelles des émissions anthropiques de SO_2 par région (Amérique du Nord = USA + Canada; Asie de l'Est = Chine + Japon + Corée du sud) de 1850 à 2005 estimées à partir d'inventaires des émissions de SO_2 (Smith et al., 2011).

de SO_2 dans le secteur de l'industrie en Chine (Lu et al., 2010).

Quand est-il de la contribution de ces sources d'émission de SO_2 dans la région Arctique? À l'aide d'un modèle numérique du transport atmosphérique du soufre, Christensen (1997) estime que les émissions de Russie et d'Europe dominent l'abondance de sulfate en Arctique. Des travaux plus récents ont reconnu l'importance croissante des émissions de l'Est de l'Asie (Shindell et al., 2008). Bien que la plupart des modèles s'accordent sur l'origine du sulfate en Arctique, qu'ils attribuent à une combinaison de sources anthropiques de l'Europe, la Russie, l'Amérique du Nord et l'Est de l'Asie; ils sont en désaccord sur l'importance de la source d'émission et la concentration de sulfate émise dans l'atmosphère de l'Arctique. Les sources de pollution locales sont restreintes et limitées à proximité du Cercle Arctique. Il s'agit notamment des émissions de l'industrie pétrolière et du transport maritime. Cependant les émissions volcaniques en Alaska et du Kamchatka (Russie) (libérant du SO_2), l'oxydation du sulfure de diméthyle (DMS) et la combustion de biomasse sont également d'importantes sources naturelles de sulfates (Fisher et al, 2011; Warneke et al, 2009) pouvant contribuer à la brume arctique.

1.3.2 Effet des aérosols acides sur les nuages de glace

Le SO_2 doit être oxydé pour former du sulfate avant de jouer un rôle dans la nucléation des aérosols et la modification des particules existantes. La transformation chimique du SO_2 en sulfate dans l'atmosphère peut se produire par oxydation en phase gazeuse (en ciel clair) avec le radical hydroxyle (OH) et/ou par oxydation en phase aqueuse (gouttelettes de nuage ou aérosols recouverts d'une solution aqueuse) par l'intermédiaire du peroxyde d'hydrogène (H_2O_2) ou de l'ozone (O_3). Ces réactions sont considérées comme les principales voies d'oxydation du dioxyde de soufre sur une échelle globale (Seinfeld et Pandis, 1998; Delmas et al., 2005). La conversion des gaz précurseurs en sulfate dépend, entre autres, des conditions atmosphériques (température, humidité relative, ...), de la concentration et de la composition de la matière particulaire et du rayonnement solaire (nécessaire pour libérer les radicaux OH) qui détermineront le temps de résidence du SO_2 dans l'atmosphère. Une fois le SO_2 libéré dans l'atmosphère, environ 46-82 % du SO_2 émis subirait des transformations chimiques pour former du sulfate tandis que le reste serait perdu par les processus de dépôt sec et humide (IPCC, 2001; Chin et al, 1996). La durée de vie d'une espèce est caractérisée par sa durée moyenne de résidence dans l'atmosphère avant d'être éliminée par réaction chimique ou par dépôt. Selon Seinfeld et Pandis (1998), le SO_2 est chimiquement actif et aurait une durée de vie moyenne dans l'atmosphère relativement courte d'une journée, tandis que les aérosols sulfatés auraient une durée de vie moyenne d'environ 4 jours. Les conditions particulièrement stables rencontrées en Arctique durant la nuit polaire (i.e les basses températures, le faible taux de précipitation, l'absence de réaction photochimique nécessitant l'énergie solaire) augmente la durée de vie des SO_2 et des sulfates de quelques jours à quelques semaines. Les sulfates se présentent principalement sous forme d'acide sulfurique H_2SO_4, de bisulfate d'ammonium $(NH_4)HSO_4$, de sulfate d'ammonium $(NH_4)_2SO_4$, ou de composés intermédiaires, en fonction de la disponibilité de l'ammoniac NH_3 pour neutraliser l'acide sulfurique (Khoder, 2002).

Le sulfate est une substance hydrophile; qui a une grande affinité avec l'eau et qui se dissous en solution aqueuse sous ses formes neutralisées. En favorisant la nucléation de la phase liquide, les sulfates sont considérés comme de bons noyaux de condensation de nuage. L'acide sulfurique est hygroscopique; il absorbe l'eau à n'importe quelle humidité relative. Le sulfate d'ammonium est déliquescent, il absorbe l'eau lorsque l'humidité relative par rapport à l'eau atteint 80 % (point de déliquescence). Par un effet d'hystérésis, cette substance ne s'assèche que lorsque l'humidité relative par rapport

à l'eau descend en dessous de 37 % (point d'efflorescence) (Seinfeld et Pandis, 1998). Bien que les points de déliquescence et d'efflorescence varient en fonction de la taille de la particule et de la température (Onasch et al., 1999), l'historique de transport des sulfates jusqu'en Arctique et l'humidité relative par rapport à l'eau relativement élevée dans cette région font que les sulfates demeurent majoritairement en solution aqueuse. Les aérosols ont la capacité d'influencer indirectement le bilan radiatif de l'Arctique en modifiant les propriétés microphysiques et macrophysiques telles que la concentrattion et la taille des gouttelettes et/ou des cristaux de glace, l'albédo, le taux de précipitation et la durée de vie des nuages (Albrecht, 1989; Twomey, 1977). C'est l'effet radiatif indirect des aérosols. Cet effet est associé au lien entre les propriétés des aérosols tels que leur nombre, leur taille, leur composition chimique et leur capacité à agir en tant que CCN ou IN. L'effet des sulfates sur les nuages chauds, connus pour être de bons CCN (Curry et al., 1996), sont assez bien identifiés (Twomey, 1977; Albrecht, 1989). En revanche, en ce qui concerne l'interaction entre les noyaux glaçogènes et les nuages de glace, il y a beaucoup d'informations à ce sujet, cependant il demeure de grandes incertitudes liées aux phénomènes et aux instruments.

Bien qu'il y ait une dispersion considérable entre les données, la plupart des études rapportent des concentrations moyennes de IN en Arctique inférieures à 1 L^{-1} (Borys, 1989; Bigg, 1980; Rogers et al, 2001). Prenni et al. (2009) ont étudié la composition chimique des IN lors de la campagne de mesures M-PACE (Mixed-Phase Arctic Cloud Experiment) qui s'est déroulée au nord de l'Alaska en automne 2004. Les particules dominantes étaient les particules de poussière (i.e oxydes métalliques, particules d'argile: kaolinite, montmorillonite ...), la suie ainsi que les mélanges de particules de poussière, soit avec de la suie ou avec des sulfates. Plusieurs recherches confirment que les particules de poussière sont de très bons noyaux glaçogènes (Pruppacher et Klett, 1997). Leur concentration en Arctique peut résulter d'un transport sur de longues distances de poussières des déserts de Gobi (Chine, Mongolie) et/ou du Taklamakan (ouest de la Chine) jusqu'en Alaska (Shinn et al., 2003; Stone et al., 2007). La suie provient de la combustion incomplète des combustibles fossiles et de la biomasse. Les conditions permettant aux particules de suie de nucléer la glace sont encore très mal déterminées. Malgré les divergences dans les résultats en laboratoire, d'un point de vue qualitatif, il peut-être affirmé que la suie est beaucoup moins efficace à nucléer la glace que la poussière minérale (Hoose et Möhler, 2012). Certaines des données de Prenni et al. (2009) soutiennent que les cendres volcaniques peuvent aussi servir de source de noyaux glaçogènes. Au cours de leur durée de vie dans l'atmosphère, les particules de

poussière peuvent être recouvertes de matières organiques et inorganiques (Usher et al., 2003). Ainsi Bigg (1980) a découvert qu'une grande partie des particules d'aérosol (y compris les particules de poussière), mesurées à Barrow (Alaska), durant l'hiver 1977 et le printemps 1978, étaient recouvertes d'acide sulfurique.

Le rôle particulier des sulfates dans la formation des nuages de glace provient de leur capacité à «désactiver» les noyaux glaçogènes qu'ils recouvrent. Eastwood et al. (2009) et Chernoff et Bertram (2010) ont démontré que les particules d'argile telles que la kaolinite, le montmorillonite, et autres, requièrent une RH_{Ice} additionelle d'environ 20-30 % afin d'initier la glace lorsque celles-ci sont recouvertes d'une fine couche de H_2SO_4 aux températures inférieures à 245 K (représentatives des températures de la troposphère). Les particules de kaolinite recouvertes d'une fine couche de $(NH_4)HSO_4$ et de $(NH_4)_2SO_4$ requièrent également une RH_{Ice} élevée pour nucléer la glace mais dans une moindre mesure que celles recouvertes d'H_2SO_4 dans la même gamme de températures. À une température froide étudiée de l'ordre de 236 K, les particules de kaolinite recouvertes de $(NH_4)_2SO_4$ deviennent aussi efficaces à nucléer de la glace que les particules de kaolinite non-recouvertes en raison du fait que le sulfate demeure solide n'ayant pas atteint son point de déliquescence. Selon Sullivan et al. (2010), l'effet de la désactivation des IN par l'acide sulfurique sur des particules de poussière est irréversible et toujours actif une fois que l'acide ait été neutralisé avec de l'ammoniac. Ces résultats soutiennent l'idée que les émissions anthropiques ou naturelles de SO_2 et NH_3 peuvent influencer les propriétés de la nucléation de la glace des particules de poussière ainsi recouvertes. Ce phénomène dépend de la taille et du type de particules, de l'épaisseur et du type de la couche de revêtement, ainsi que des températures étudiées.

Grenier et al. (2009) parlent d'effet d'inhibition de gel induit par les sulfates (SIFI en anglais pour Sulphate-Induced Freezing Inhibition). Cet effet pourrait expliquer la faible fraction de IN contenue dans les aérosols de la brume arctique (Rogers et al., 2001; Borys, 1989. Blanchet et Girard (1994) et Girard (1998) soutiennent que l'effet SIFI pourrait avoir un effet important sur la microstructure des nuages et sur le bilan radiatif en surface pendant l'hiver Arctique. Selon leur hypothèse, la réduction de la concentration des IN par l'effet SIFI favoriserait une diminution de la concentration en nombre et une augmentation de la taille moyenne des cristaux de glace, en raison d'une compétition réduite pour une même quantité de vapeur d'eau disponible (i.e. par rapport à une situation d'absence de sulfates). Par conséquent, le taux de précipitation des cristaux de glace et le taux de déshydratation de la troposphère augmenteraient tandis que l'effet de serre associé à la vapeur d'eau diminuerait. Il s'ensuivrait une

accélération du refroidissement déjà en cours dans la masse d'air, puis l'activation d'une autre série de cristaux, donnant ainsi lieu à une rétroaction. Ce processus a été baptisé «Rétroaction - Déshydratation - Effet de Serre» (RDES) (Girard, 1998).

1.3.3 Evaluation de l'effet SIFI sur les propriétés nuageuses et le bilan radiatif en surface en Arctique par la modélisation

Quelques études de modélisation ont permis d'évaluer l'effet RDES, dont l'effet SIFI constitue le déclencheur, sur le climat Arctique (Girard et al., 2001; 2005; Girard et Stefanof, 2007). La plus récente étude publiée à ce sujet est celle de Girard et al. (2012). Les effets des noyaux glaçogènes acidifiés (effet SIFI) sur les propriétés nuageuses et sur le bilan radiatif en surface en Arctique pour les mois de janvier et février 2007 ont été évalués à partir de simulations effectuées à l'aide du modèle GEM-LAM (Limited-Area version of the Global Multiscale Environmental Model) (Côté et al., 1998) combinées avec les résultats d'expériences menées en laboratoire de Eastwood et al. (2008; 2009). Les résultats montrent que les particules de poussière acidifiées ont un impact non négligeable sur la microstructure des nuages, la déshydratation de l'atmosphère, le bilan radiatif et la température au-dessus de l'Arctique central. L'acidification des IN entraîne des nuages de glace de moyenne et haute altitude d'une faible épaisseur optique et des nuages en phase-mixte de bas niveaux plus fréquents et persistants. L'augmentation du LWP n'affecte pas l'émissivité des nuages en phase-mixte puisqu'à partir d'un certain seuil, ils émettent comme un corps noir ($>$ 10-15 g.m^{-2}). Le forçage radiatif des nuages (CRF en anglais pour Cloud-Radiative Forcing) dépendra uniquement du IWP contenu dans les nuages de moyenne et hautes altitudes. Ces changements dans la microstructure du nuage affectent ainsi le bilan radiatif au sommet de l'atmosphère avec une diminution du forçage radiatif des nuages dans l'infrarouge de 0 à -6 W.m^{-2} au-dessus du pan-arctique. Ceci conduit à un refroidissement de l'atmosphère qui varie entre 0 et -4 K et ainsi favorise la formation de nuages avec une diminution de l'effet de serre de la vapeur d'eau et une augmentation des précipitations. Les résultats montrent que ce refroidissement de l'Arctique est assez grand pour renforcer la circulation troposphérique à grande échelle associée au front polaire à travers l'intensification de la zone barocline.

Cependant, comme le vrai mélange des noyaux glaçogènes en Arctique présente une grande diversité dans leur composition, leur taille, leur forme et leur état thermodynamique, l'évaluation de l'effet SIFI sur le climat Arctique ne peut se faire uniquement à partir des travaux de modélisation sur la base des mesures effectuées en laboratoire.

1.3.4 À la recherche d'une preuve observationnelle de l'effet SIFI

Grenier et al. (2009; 2010) furent les premiers à rechercher une preuve observationnelle du mécanisme RDES dans l'atmosphère Arctique en utilisant les observations satellitaires. Un algorithme pour la caractérisation des différents types de nuages de glace (TICs en anglais pour Type of Ice Clouds) et des aérosols en Arctique durant les nuits polaires a été développé en utilisant les caractéristiques de détection conjointe du radar CloudSat et du lidar CALIPSO (Cloud-Aerosol Lidar et Infrared Pathfinder Satellite Observation) du train spatial A-TRAIN (Afternoon Train). Cet algorithme, dit AWAC4 (en anglais pour Arctic Winter and Cloud Classification from CloudSat and CALIPSO), est entièrement décrit dans Grenier et al. (2009; 2010); nous n'en rappellerons que le principe général.

AWAC4 sépare les TICs en deux catégories selon un critère de taille des cristaux de glace, défini par la limite de détection du radar CloudSat ($D >$ 28-30 μm). Les nuages de glace de type 1 (TIC-1) ne sont visibles que par le lidar tandis que les nuages de glace de type 2 (TIC-2) sont perçus à la fois par le lidar et le radar. Les TIC-2 sont divisés en TIC-2A et TIC-2B. Les TIC-2A sont surmontés d'une fine couche de forte concentration de petits cristaux de glace (invisible par le radar) (TIC-1). En revanche, les TIC-2B ne sont pas recouverts par une fine couche de TIC-1. Ceci suggère un second critère de classification des TICs; le taux de croissance des cristaux de glace au sommet du nuage. Ainsi les TIC-1/2A auraient un taux de croissance des cristaux de glace plus lent et «graduel» entre leur formation et le stade de précipitation; tandis que les TIC-2B auraient un taux de croissance, dit «explosif», i.e. où le cristal atteint rapidement sa taille de précipitation au moment de sa nucléation. La méthodologie de classification des TICs à partir des observations satellitaires est résumée dans le tableau 1.1.

AWAC4 fournit aussi un indice d'aérosols basé sur le coefficient de rétrodiffusion à 532 nm, β_{532}, et du rapport de couleur, CR=β_{1064}/β_{532}, à partir des mesures du lidar CALIOP. L'indice d'aérosols a été comparé à des séries temporelles de mesures in-situ de la concentration en sulfate au-dessus de la station de recherche Zeppelin (Svalbard, Norvège) pour les hivers 2007 et 2008, et validé comme un proxy approprié pour l'identification de la brume arctique et des aérosols marins dans les volumes non-nuageux sondés de l'atmosphère Arctique. La figure 1.6 montre un exemple d'une scène sondée par AWAC4, le 5 janvier 2009 en Arctique.

Selon l'hypothèse de Grenier et al., 2009; 2010), l'explication selon laquelle les TIC-2

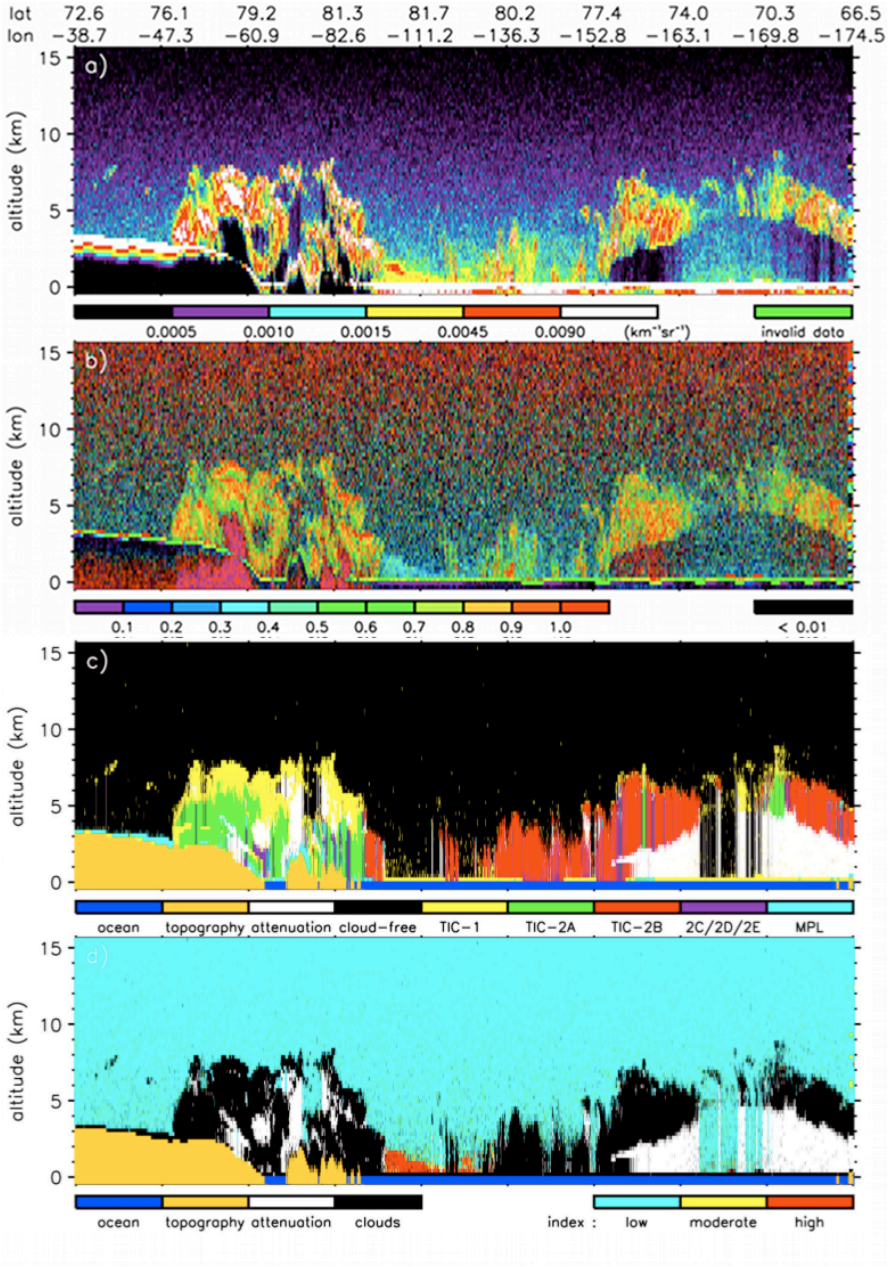

Figure 1.6 Exemple d'une scène Arctique, incluant β_{532} mesuré (CAL-LID-L1-Prov-V2-02.2009-01- 05T14-33-12ZN) (a), CR (b), la classification des nuages (d), et l'indice d'aérosols (d) (Grenier et al., 2009)

Table 1.1 Résumé de la méthode de classification des TICs (Grenier et Blanchet, 2010).

Cloud Type	Description and Physical Characteristics	Identification Method
Mixed-phase	Clouds with a significant liquid-to-ice ratio, possibly including liquid-only clouds. Flat top. Optically thick. Small vertical extent. Low altitude. Temperature above homogeneous freezing point. High color ratio ($\chi \approx 1$).	Sharp vertical β_{532} gradient at top. $T > -39°C$. Thickness not exceeding 1250 m.
TIC-1	Ice clouds with small size particles, seen by the lidar only. Small ice crystal effective radius ($r_{ie} \leq 30$ μm). Temperature below melting point. High color ratio ($\chi \approx 1$).	Unseen by radar. $T < 0°C$. Not previously identified as mixed-phase or TIC-2. $\beta_{532} \geq \beta_{532_min} = 0.0009$ km^{-1}sr^{-1}. $\delta \geq \delta_{min} = a_0 + a_1 / \beta_{532}$. Bin surrounded by at least one other TIC-1 bin.
TIC-2	Ice clouds with large size particles, seen by the lidar and the radar. High ice crystal effective radius ($r_{ie} \leq 30$ μm). Temperature below melting point. High color ratio ($\chi \approx 1$).	Seen by radar. $T < 0°C$. Not previously identified as mixed-phase.
2A	TIC-2 under a radar-unseen cloud layer. Covered by a TIC-1 layer.	Important TIC-1 cover ($\Delta h \geq 800$ m).
2B	TIC-2 whose top is seen by the radar. Uncovered by a TIC-1 layer.	No or small TIC-1 cover ($\Delta h \leq 320$ m).
2C	Ice crystals precipitating below a mixed-phase layer.	Immediately below mixed-phase.
2D	Ambiguous thickness case.	TIC-1 cover of intermediary thickness (320 m $\leq \Delta h \leq$ 800 m).
2E	Ambiguous gap case.	Less than 70% of the minimal TIC-1 cover for having TIC-2A lay within 1200 m above the cloud top.

sont recouverts d'un TIC-1 (TIC-1/2A) ou pas (TIC-2B) réside dans la dépendance de la nucléation de la glace en la disponibilité et la taille des IN. Ils suggèrent que l'effet SIFI induirait un décalage dans la distribution des TIC-2, i.e. des TIC-1/2A vers les TIC-2B (nuages supposés favorisés par l'effet SIFI). Deux approches ont été explorées pour éventuellement valider ou rejeter la conséquence possible de l'effet SIFI dans la troposphère libre, selon laquelle de fortes concentrations en sulfate favoriseraient la présence/formation de nuages de glace composés de gros cristaux (TIC-2B). La première consistait à analyser les distributions spatiales de l'indice d'aérosols et de la fraction des TIC-2B (définie comme TIC-2B/TIC-2) au-dessus du cercle arctique pendant les hivers 2007 à 2009. La seconde approche consistait à tester la corrélation entre le rayon effectif des cristaux de glace au sommet des TIC-2B et l'indice de sulfate juste au-dessus. Les deux tests n'ont montré aucune preuve d'un effet SIFI significatif localement. Cependant, il a été mis en évidence que de fortes concentrations de sulfates localisées en amont des fortes fractions de TIC-2B par rapport aux vents seraient compatibles avec un effet SIFI agissant sur une échelle de temps relativement longue.

L'algorithme AWAC4 comporte de nombreuses limites (Grenier et al. 2009; 2010). L'effet SIFI se manifeste à l'intérieur des nuages alors que les mesures effectuées par les instruments de CloudSat et CALIPSO ne permettent pas de concevoir un proxy réaliste pour les concentrations des sulfates à l'intérieur des nuages puisque le contenu en eau y domine les signaux de rétrodiffusion et de réflectivité. Sans indication que la concentration des aérosols/sulfates situés au-dessus des TIC-2B est bien corrélée avec

la concentration des aérosols interstitiels, les résultats de Grenier et al (2009; 2010) ne peuvent pas être clairement interprétés comme la preuve que les concentrations élevées en sulfate favorisent une population de nuages de glace faits de plus gros cristaux de glace. Des mesures prises directement dans les nuages sont nécessaires afin d'obtenir de plus fermes conclusions. De plus, la détection des nuages et des événements de brume arctique, basée sur une méthode dite «de seuils», pourrait être améliorée en utilisant les informations sur les propriétés nuageuses restituées à partir de l'algorithme Varcloud.

C'est dans ce cadre que s'inscrit mon projet de recherche doctoral avec pour mission d'étudier les interactions entre la microphysique des nuages glacés et des aérosols en Arctique à l'aide des données in-situ et satellitaires. La section suivante présente les moyens d'observation dont nous disposons afin de caractériser les propriétés microphysiques et optiques des nuages de glace arctiques.

1.4 Mesures microphysiques des nuages de glace: Méthodes et Instruments

Les principaux paramètres permettant de décrire les propriétés microphysiques et optiques des nuages de glace sont la distribution dimensionnelle des particules (PSD en anglais pour Particle Size Distribution, $n(D)$) et les quantités intégrales de la PDS telles que la concentration totale en nombre des cristaux de glace (N_{ic}), le contenu en glace (IWC en anglais pour Ice Water Content), le coefficient d'extinction (σ_{ext}); ainsi que la quantité intensive du rayon effectif des cristaux de glace (R_{ei}).

1.4.1 Définition des paramètres microphysiques

La distribution dimensionnelle des particules traduit la façon dont sont réparties les particules en fonction de leur diamètre. La densité de concentration des particules $n(D)$ (m^{-4}) par unité de diamètre D dans un volume d'échantillonnage est définie comme suit :

$$n(D) = \frac{dn}{dD} \tag{1.1}$$

La concentration totale des particules N (m^{-3}) est alors :

$$N = \int n(D).dD \tag{1.2}$$

Le contenu en glace IWC (kg.m^{-3}) traduit la quantité de glace par unité de volume :

$$IWC = \int m(D).dD \tag{1.3}$$

avec $m(D)$ (kg.m^{-4}), la densité de masse des particules par unité de diamètre D (m).

Le coefficient d'extinction σ_{ext} (m^{-1}) traduit la capacité du volume d'une particule à absorber le rayonnement dans le visible. Il dépend de la surface de la particule :

$$\sigma_{ext} = 2 \int A(D).dD \tag{1.4}$$

avec $A(D)$ (m^{-2}) la densité de l'aire des particules par unité de diamètre D et 2 la valeur du coefficient d'efficacité d'extinction dans le visible (Van de Hulst, 1981).

Dans le cas d'une particule de glace sphérique, la densité de masse des particules par unité de diamètre est obtenue en multipliant la densité du volume des particules par unité de diamètre $v(D)$ (m^{-1}) par la densité de l'espèce ρ (kg.m^{-3}):

$$m(D) = \rho.v(D) = \frac{\pi\rho}{6}.D^3.n(D) \tag{1.5}$$

De même que la densité de l'aire (aire du disque apparent) des particules par unité de diamètre devient :

$$A(D) = \pi.D^2.n(D) \tag{1.6}$$

Du fait de la non-sphéricité des cristaux de glace et du fait que la plupart d'entre eux ont une densité apparente inférieure à celle de la glace (proportion d'inclusions d'air dans la particule de glace), il est parfois nécessaire de paramétrer la masse et/ou l'aire projetée du cristal de glace pour déterminer les quantités intégrales. Mitchell et al. (1990) ont proposé plusieurs relations masse-diamètre, $m(D)$, en fonction du type de particules de glace et en examinant des données récoltées dans des tempêtes d'hiver en Californie entre 1986 et 1987 à partir de sondes aéroportées. Les relations masse-diamètre sont répertoriées dans le tableau 1.2 en fonction du type de cristal.

À partir des mêmes données, Baker et Lawson (2006b) ont développé une relation entre la masse du cristal (m en mg) et l'aire projetée (A en mm^2) de celui-ci :

$$m(A) = 0.0155A^{1.218} \tag{1.7}$$

Table 1.2 Relations masse-diamètre, $m(D)$, de Mitchell et al. (1990) des particules de glace récoltées lors de tempêtes d'hiver au Sierra Nevada (Californie) en 1986-87. La première colonne donne la forme des particules de glace. La deuxième donne le nombre de particules de glace selon sa forme. La troisième colonne donne les coefficients de la relation puissance masse-diamètre avec m en mg et L ou D, le diamètre maximum des particules en mm.

Crystal type	N	Equation
All	630	$0.021L^{2.0}$
Elementary needles	16	$0.0048L^{1.8}$
Rimed elementary needles	7	$0.0059L^{2.1}$
Long columns	64	$0.012L^{1.9}$
Rimed long columns	27	$0.023L^{1.8}$
Combinations of long columns	62	$0.017L^{1.8}$
Rimed combinations of long columns	54	$0.025L^{1.9}$
Short columns	12	$0.064L^{2.6}$
Combinations of short columns	17	$0.031L^{1.9}$
Hexagonal plates	30	$0.028L^{2.5}$
Radiating assemblages of plates	63	$0.019L^{2.1}$
Side plane	77	$0.021L^{2.3}$
Heavily rimed dendritic crystals	20	$0.068L^{2.2}$
Fragments of heavily rimed dendritic crystals	39	$0.027L^{1.7}$
Aggregates of side planes	35	$0.021L^{2.2}$
Aggregates of side planes, bullets, and columns	31	$0.022L^{2.1}$
Aggregates of radiating assemblages of plates	30	$0.023L^{1.8}$
Aggregates of fragments of heavily rimed dendritic crystals	46	$0.034L^{2.0}$

D'autres relations sont utilisées dans les calculs des paramètres microphysiques et radiatifs (Brown et Francis, 1995; Francis et al., 1998). Dans la suite de notre étude, nous aurons recours aux relations citées précédemment. Les incertitudes dans le calcul des quantités intégrales sont en grande partie liées aux incertitudes sur la reconnaissance du type de particules dans le choix de la relation aire-masse-diamètre.

Le rayon effectif R_e (μm) est un paramètre radiatif qui traduit l'effet des particules nuageuses sur les rayonnements visible et infra-rouge. Plusieurs définitions de ce paramètre sont proposées dans la littérature (McFarquhar et Heymsfield, 1998). Dans la suite de notre étude nous utiliserons les définitions les plus couramment utilisées; celles de Stephens et al. (1990) et de Foot et al. (1988) (Eq. 1.8).

$$R_e = \frac{1}{2}.\frac{\int n(D).D^3.dD}{\int n(D).D^2.dD} = \frac{3}{2\rho}.\frac{IWC}{\sigma_{ext}} \tag{1.8}$$

Cette relation qui pose la définition de R_e n'est utile que lorsque nous sommes en présence de gouttes d'eau liquide sphériques. Mais, en revanche, c'est beaucoup plus compliqué lorsque nous sommes en présence de cristaux de glace. Les quantités intégrales de IWC et σ_{ext} ne peuvent pas s'exprimer comme l'intégrale de la PSD puisque pour chaque particule, il y a une relation entre le volume et le diamètre, et entre le coefficient de diffusion et le diamètre, différentes.

Les moyens dont nous disposons à l'heure actuelle pour observer et caractériser les différentes propriétés des nuages de glace sont l'instrumentation aéroportée in-situ et la télédétection.

1.4.2 La microphysique aéroportée in-situ

Il existe deux catégories d'instruments permettant d'obtenir les paramètres nuageux cités précédemment. Les instruments pour la mesure directe de la distribution dimensionnelle des particules et ceux pour la mesure directe des quantités intégrales.

Les capteurs microphysiques, de la première catégorie, comptent le nombre de particules par classe de diamètres sur un volume d'air échantillonné permettant ainsi une description de la distribution de leur taille. Ils dérivent à partir de l'information de la PSD les quantités intégrales suivant les relations aire-masse-diamètre décrites dans la section 1.4.1. Dépendamment du type de capteurs, l'intervalle de mesure est différente, de quelques microns jusqu'à plusieurs centaines de microns. Les compteurs optiques de

particules tels que le FSSP (Forward Scattering Spectrometer Probe) (3-45 μm), CAS (Cloud et Aerosol Spectrometer) (1-50 μm) et CDP (Cloud Droplet Probe) (2-50 μm) (Dye et Baumgardner, 1984; Baumgardner et al., 2001; Lance et al., 2010) mesurent l'intensité du rayonnement diffusé vers l'avant d'une particule qui passe à travers le faisceau laser. En supposant que la particule est sphérique, que son indice de réfraction et que les angles de diffusion sur lequel la lumière est collectée sont connus, la taille des particules est déterminée en utilisant la théorie de Mie (Bohren et Huffman, 1983) qui lie l'intensité du rayonnement diffusé à la taille des particules. Les capteurs OAP (Optical Array Probes) tels que le 2DC (Two Dimensional Cloud) (25-800 μm), 2DP (Two Dimensional Precipitation) (200-6400 μm), 2DS (Two Dimensional Stereo) (10-1280 μm) et CIP (Cloud Imaging Probe) (15-2500 μm) (Baumgardner et al., 2001; Lawson et al., 2006a) capturent l'ombre d'une particule qui passe à travers un faisceau laser focalisé sur une rangée linéaire de photodiodes. Une série temporelle de multiples tranches unidimensionnelles de la particule est enregistrée. L'information sur la forme et la taille d'une particule est déduite de l'analyse de l'ombre enregistrée par une variété d'algorithmes de reconnaissance de formes. Ces algorithmes sont complexes et tentent aussi d'éliminer le bruit des diodes optiques et les effets de brisures des particules sur la pointe de la sonde (≪shattering≫ en anglais). Ces instruments diffèrent dans le nombre de photodiodes, la résolution et la fréquence d'échantillonnage. Les capteurs microphysiques sont limités par ces problèmes de ≪shattering≫. Ceci est particulièrement le cas pour les compteurs optiques de particules (FSSP, CAS) (McFarquhar et al., 2007; 2011; Jensen et al, 2009; Protat et al, 2010). Il y a beaucoup d'incertitudes dans les mesures des petits cristaux inférieurs à 50 μm. C'est pourquoi il est raisonnable, voir indispensable, d'utiliser différentes mesures pour avoir une idée des limites supérieures et inférieures des concentrations selon différentes plages de diamètre.

Dans la deuxième catégorie, les instruments les plus utilisés pour la mesure directe des quantités intégrales tels que le contenu en eau totale (TWC en anglais pour Total Water Content), liquide (LWC en anglais pour Liquid Water Content) et/ou solide (IWC) sont les sondes à fil-chaud. Un cylindre chauffé est utilisé pour mesurer la quantité de chaleur nécessaire à l'évaporation de l'eau liquide/solide accumulée sur le cylindre. Le contenu en eau est dérivé de cette quantité de chaleur libérée. La sonde ≪Nevzorov≫ utilise deux capteurs, dont un pour mesurer TWC et le deuxième LWC. La différence des deux termes donne le contenu en glace (IWC). Dans cette même catégorie existe la sonde ≪Rosemont Icing Detector≫ (RID). Un cylindre métallique est mis en oscillation à sa fréquence naturelle. Quand la glace s'accumule sur le cylindre,

la fréquence d'oscillation diminue. Lorsque la fréquence d'oscillation du cylindre atteint une valeur seuil minimale, le cylindre est chauffé pour faire fondre la glace; et la mesure reprend. Le variation du taux de tension (dV_R/dt) caractérise le taux d'accrétion de glace sur la surface de la tige qui peut être recalculé en IWC. Mais la valeur IWC, avec une faible exactitude < 30 %, n'est pas la mesure recherchée. On utilise cet appareil pour détecter la présence d'eau liquide dans le nuage de glace, caractérisée par des valeurs du taux de changement de signal RID (dV_R/dt) supérieurs à 2 mV.s^{-1} (Cober et al., 2001).

Au printemps 2008, une série de campagnes de mesures polaires ont été réalisées. Le programme ARM (Atmospheric Radiation Measurement), la NOAA (National Oceanic and Atmospheric Administration) et la NASA (National Aeronautics and Space Administration) ont stationné des avions de recherche à Barrow et/ou Fairbanks, en Alaska, tandis que le CNRS (Centre National de la Recherche Scientifique) a envoyé un avion de recherche à Kiruna, en Suède.

La mission Indirect and Semi-Direct Aerosols Campaign (ISDAC) (McFarquhar et al., 2011) a été menée par le département DOE-ARM (Department Of Energy-ARM) dont le principal objectif fut de collecter une série d'observations essentielles à l'avancée de notre compréhension sur les propriétés des nuages et des aérosols. Cette expérience fut conduite en avril 2008 dans le nord de l'Alaska (NSA, North Slope of Alaska). L'avion ≪Convair-580≫ du conseil National de Recherche Canadien (NRC) (Figure 1.7b) a servi de plate-forme pour des mesures in situ dans les nuages entre les sites de Barrow et de Fairbanks (Figure 1.7a). Celui-ci était équipé de près de 40 instruments utilisés pour obtenir des mesures des propriétés des aérosols, de l'état atmosphérique, des propriétés microphysiques des nuages (Figure 1.7c), des précipitations et du rayonnement. En parallèle la mission Aerosol, Radiation, and Cloud Processes affecting Arctic Climate (ARCPAC) a été menée par la NOAA (Warneke et al., 2009) et la mission Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites (ARCTAS-A) par la NASA (Jacob et al., 2010), toutes deux dédiées à la détection de la brume arctique, du forçage radiatif des aérosols et aux études de la pollution anthropique. Les avions WP-3D de la NOAA et DC-8 et P-3B de la NASA étaient équipés d'un ensemble complet de capteurs destinés à l'étude de la chimie, de l'optique et de la microphysique des aérosols et celle des caractéristiques des espèces en phase gazeuse au printemps en Arctique, complétant les objectifs d'ISDAC.

Les mesures in-situ sont relativement précises mais décrivent les propriétés nuageuses

Figure 1.7 (a) Carte de l'Alaska (b) Avion «Convair-580» du NRC utilisé pendant ISDAC (c) Quelques capteurs microphysiques du Convair-580 (sens horaire à partir du haut à gauche): 2DC, 2DP, 2DS, Fast-FSSP et CSI/CDP (http://acrf-campaign.arm.gov/isdac/).

de façon ponctuelle, spatialement et temporellement. Les satellites constituent le seul moyen d'étude et de suivi à grande échelle. Pour récolter de l'information à distance, nous avons recours à la télédétection.

1.4.3 La synergie des instruments de télédétection

Pour établir des mesures à distance, les satellites météorologiques utilisent des instruments de télédétection passive ou active. Les capteurs passifs (par exemple les radiomètres) mesurent l'intensité du flux du rayonnement visible ou infrarouge réfléchi/émis par les cibles. Les radiomètres effectuent des mesures dans des canaux bien déterminés qui correspondent chacun à une bande particulière de longueurs d'ondes. Blanchard Y. (2011) a évalué le potentiel des mesures radiométriques infrarouge thermique (IRT) au sol, à la station polaire d'Eureka (Nunavut, Canada), afin de restituer l'épaisseur optique et le rayon effectif des particules des nuages de glace observés. Les résultats montrent une bonne inversion de l'épaisseur optique et ont permis d'effectuer une classification des TICs en termes de TIC-1 (pour les cristaux de $D_{eff} < 30$ μm) et de TIC-2 ($D_{eff} >$ 30 μm). Cependant, les méthodes classiques d'observation des nuages par radiométrie sont limitées lorsque l'on désire accéder à la structure verticale du nuage (Wyser et Jones, 2005). Une information que les capteurs actifs (i.e. les radars, lidars) rendent accessible. Ces nouvelles techniques de télédétection active, pour lesquelles l'instrument est à la fois émetteur et récepteur du rayonnement utilisé pour sonder une cible, sont capables de détecter aisément les nuages de glace ainsi que les couches d'aérosols.

Chaque instrument de télédétection peut être utilisé seul mais leur synergie permet d'utiliser leur complémentarité, d'observer un phénomène sous plusieurs mesures indépendantes, et ainsi de restituer plus d'informations, spécifiquement pour les nuages de glace. Il existe plusieurs combinaisons possibles d'instruments de télédétection passive et active. Dans le cadre de cette thèse, la synergie du lidar à rétrodiffusion Caliop et du radar profileur de nuage à 94 GHz embarqués respectivement sur les satellites CALIPSO et CloudSat a été utilisée pour l'étude des nuages de glace. En combinant les informations du lidar et du radar, l'algorithme VarCloud, développé par Hogan et Delanoë (2008), permet de restituer les profils verticaux de σ_{ext}(z), IWC(z) et R_{ei}(z) dans les régions de nuages glacés détectées par les deux instruments. Cet algorithme est expliqué en détails par Delanoë et Hogan (2008; 2010); le principe général est décrit dans l'Annexe A.

Il existe des limites communes aux méthodes d'inversion. Elles concernent principalement les paramètres des particules de glace tels que leur forme, leur orientation, leurs distributions verticale et dimensionnelle, qui sont des paramètres a priori inconnus pouvant engendrer des erreurs d'inversions. Delanoë et al. (2012) ont démontré la capacité de l'algorithme VarCloud à restituer les propriétés nuageuses d'un Nimbostratus glacé observé le 1er Avril 2008 lors de la campagne de mesures POLARCAT (Polar Study using Aircraft, Remote Sensing, Surface Measurements and Models, of Climate, Chemistry, Aerosols, and Transport) (Kiruna - Suède - Printemps 2008). Les résultats montrent que la combinaison synergique du radar et du lidar permet une meilleure restitution des propriétés nuageuses que celle obtenue par le radar ou le lidar seul comparé aux mesures in situ, et qu'en général, le radar surestime tandis que le lidar sous-estime le contenu en glace.

1.4.4 Trajectographie Lagrangienne

L'analyse de la variabilité des voies de transport et des sources affectant les régions arctiques, a été menée avec le modèle Lagrangien de Dispersion de Particule (LPD), FLEXPART, développé par le NILU (Norwegian Institute for Air Research) (Stohl et al., 1998; 2005). FLEXPART est dédié au calcul du transport d'espèces chimiques et particulaires et permet d'effectuer des simulations trajectographiques afin d'identifer 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 afin de caractériser les propriétés des aérosols (CALIOP) en amont des

nuages de glace. Cette approche lagrangienne a été précédemment développé par Adam de Villiers et al. (2010b). Le principe général et la description du modèle FLEXPART sont décrits dans l'Annexe B.

1.5 Objectifs, plan et pertinence du projet de recherche

1.5.1 Objectifs et plan de thèse

Les principaux objectifs de ce projet de recherche doctoral sont l'identification des processus de formation des nuages de glace arctiques et l'évaluation du rôle des aérosols acidifiés dans leur formation à l'aide de mesures in-situ et satellitaires.

Le corps de cette thèse est composé de quatre chapitres. Ce premier chapitre, intitulé «Arctique: Laboratoire naturel pour l'étude des interactions nuage de glace-aérosol-rayonnement», introduit la problématique et les objectifs du projet de recherche. Les chapitres II et III représentent, respectivement, un article accepté et un article soumis pour publication dans un journal scientifique.

L'article du deuxième chapitre, intitulé «Characterization of Arctic ice cloud properties observed during ISDAC», a été publié dans le Journal of Geophysical Research-Atmosphere en 2012. Cet article vise à étudier comment les propriétés microphysiques des nuages de glace arctiques TIC-1/2A et TIC-2B diffèrent en utilisant des observations in-situ complétées par des données satellitaires. Pour se faire, les propriétés microphysiques, thermodynamiques des nuages de glace, ainsi que les propriétés physico-chimiques des aérosols environnants, observés lors de la campagne de mesures ISDAC en avril 2008 en Alaska ont été analysées. Deux classes distinctes de TICs ont pu être identifiées à partir des mesures aéroportées ainsi que des observations spatiales lidar (CALIPSO) et radar (CloudSat) suivant l'algorithme de restitution des propriétés nuageuses VarCloud. Sept des douze cas de TICs identifiés par les mesures in-situ ISDAC ont été sélectionnés avec un faible contenu en glace. Ils se divisent en deux catégories correspondantes aux caractéristiques brutes de ceux identifiés à partir de données lidar (CALIPSO) et radar (CloudSat) suivant l'algorithme AWAC4 (i.e TIC-1/2A versus TIC-2B). Deux études de cas ISDAC de TIC-1/2A et TIC-2B ont été choisis pour une analyse approfondie et une comparaison qualitative avec les propriétés nuageuses restituées de l'algorithme VarCloud situées spatio-temporellement à proximité des vols ISDAC.

L'article du troisième chapitre, intitulé «On the Relationship between Arctic Ice Clouds et Polluted Air Masses over the North Slope of Alaska in April 2008», a été soumis dans le journal Atmospheric Chemistry et Physics en 2012. Cet article vise à étudier l'origine et la composition des masses d'air dans lesquelles les TICs ISDAC se forment; afin de vérifier l'hypothèse concernant le lien potentiel entre la formation des TIC-2B et l'acidité des aérosols. La variabilité temporelle de la concentration moyenne du dioxyde de soufre au-dessus de l'Alaska à partir de données satellitaires OMI, avec les conditions synoptiques associées, ont été présentées pour la période de Mars à Avril 2008. Ainsi les principales sources potentielles d'émission de dioxyde de soufre et leur voie de transport jusqu'en Alaska au cours de la période considérée ont pu être identifiées en utilisant une approche lagrangienne avec le modèle de dispersion des particules FLEXPART. Les deux études de cas ISDAC de TIC-1/2A et TIC-2B (Chapitre II) ont de nouveau été choisies pour une analyse approfondie sur les sources et les caractéristiques des masses d'air à l'origine de leur formation. Les résultats sont discutés en examinant les propriétés nuageuses et aérosols sur les traces du satellite CALIPSO, qui interceptent les rétro-trajectoires des masses d'air considérées dans les régions éloignées des mesures aéroportées.

Le quatrième chapitre, intitulé «Zones arctiques propices à la formation des nuages de glace de type TIC-2B» discute des implications des résultats obtenus pour les études de cas au niveau régional (ou à plus grande échelle) appuyées par les précédentes études de modélisation et de télédétection. Au terme de cette recherche, nous avons proposé des perspectives de méthodologie et de recherche sur les moyens d'améliorer davantage nos connaissances sur les interactions nuages de glace-aérosols acidifiés, qui seront discutées dans le dernier chapitre V, intitulé «Conclusions et Perspectives».

1.5.2 Pertinence du sujet de recherche

Ce projet de recherche a débuté en automne 2008, au moment opportun. Il coïncidait avec le lancement récent des satellites Cloudsat et CALIPSO (Avril 2006), du programme de recherche mené dans le cadre de l'API (2007-2009), ainsi qu'aux changements climatiques régionaux en cours.

Le cycle de vie d'un nuage est dicté par des interactions complexes entre de nombreux processus (thermodynamiques, microphysiques, radiatifs, ...) qui interviennent à des échelles de temps et d'espace très variés. Afin de prendre en compte ces interactions aux échelles locales et à méso-échelle, la complémentarité des diverses techniques

d'observation (campagnes de mesures, expériences en laboratoire, et les satellites) avec la modélisation numérique sont indispensables. Ainsi les données récoltées lors des campagnes de mesures du primtemps 2008 dans le cadre de l'API, avec les premières mesures spatiales de profils verticaux de l'atmosphère par sondage lidar et radar millimétrique ouvraient de nombreuses perspectives dans l'observation et l'étude des nuages glacés et des aérosols en Arctique.

Ce projet de recherche a été réalisé en partenariat entre le centre pour l'Étude et la Simulation du Climat à l'Échelle Régionale (ESCER - UQÀM - Montréal - Québec - Canada), sous la direction du professeur agrégé Éric GIRARD et du Laboratoire Atmosphères, Milieux et Observations Spatiales (LATMOS - Paris 6 - France), sous la direction du directeur adjoint Jacques PELON, permettant de combiner les expertises en observations des différents groupes de recherche. Il s'agit d'une première collaboration directe. Depuis la publication de l'hypothèse RDES (Blanchet et Girard, 1994), la plupart des efforts des professeurs Éric GIRARD et Jean-Pierre BLANCHET (ESCER) ont été consacrés aux nuages Arctiques, leurs interactions avec les aérosols et la nucléation de la glace, dans le but ultime de construire un outil de modélisation fiable afin d'éventuellement l'utiliser pour des scénarios de changements climatiques et des simulations liées aux effets indirects radiatifs des aérosols. Le laboratoire LATMOS est reconnu pour ses activités et ses expertises sur l'étude des processus et des modifications des propriétés physiques à partir des observations aéroportées et spatiales par télédétection.

Cette étude représente une première étape essentielle et importante qui relie les précédentes études de modélisation, de télédétection et d'expériences en laboratoire, avec l'observation in-situ des TICs et des aérosols.

CHAPITRE II

CHARACTERIZATION OF ARCTIC ICE CLOUD PROPERTIES OBSERVED DURING ISDAC

This chapter is presented in the format of a scientific article. It was published in 2012 in the Journal of Geophysical Research. The design of the research and its performance together with the analysis of data and the redaction of this article are entirely based on my work, with the co-authors involved in the supervision of all these tasks.
The detailed reference is:

Jouan[1,2], C., Girard[1], E., Pelon[2], J., Gultepe[3], I., Delanoë[4], J. and Blanchet[1], J.P., 2012: ≪Characterization of Arctic ice cloud properties observed during ISDAC≫. Journal of Geophysical Research; DOI 2012JD017889.

[1]ESCER Centre, Department of Earth and Atmospheric Sciences, University of Quebec At Montreal, H3C 3P8, Montreal, Quebec, Canada.
[2]Laboratoire Atmosphère, Milieux et Observations Spatiales, 75252, Paris, France.
[3]Environment Canada, M3H 5T4, Toronto, Ontario, Canada.
[4]Laboratoire Atmosphère, Milieux et Observations Spatiales, 78280, Guyancourt, France.

Abstract

Extensive measurements from ground-based sites and satellite remote sensing (CloudSat and CALIPSO) reveal the existence of two Types of Ice Clouds (TICs) in the Arctic during the polar night and early spring. The first type (TIC-2A) being topped by a cover of non-precipitating very small (radar-unseen) ice crystals (TIC-1) is found more frequently in pristine environment whereas the second type (TIC-2B), detected by both sensors, is associated preferentially with high concentration of aerosols. To further investigate the microphysical properties of TIC-1/2A and TIC-2B, airborne in-situ and satellite measurements of specific cases observed during the ISDAC campaign have been analyzed. For the first time, Arctic TIC-1/2A and TIC-2B microstructures are compared using in-situ cloud observations. Results show that the differences between them are confined in the upper part of the clouds where ice nucleation occurs. TIC-2B clouds are characterized by fewer (by more than one order of magnitude) and larger (by a factor of 2 to 3) ice crystals and a larger ice supersaturation (of 15 to 20 %) compared to TIC-1/2A. Ice crystal growth in TIC-2B clouds seems explosive whereas it seems more gradual in TIC-1/2A. It is hypothesized that these differences are linked to the number concentration and the chemical composition of aerosols. The ice crystal growth rate in very cold conditions impinges on the precipitation efficiency, dehydration and radiation balance. These results represent an essential and important first step to relate previous modeling, remote sensing and laboratory studies with TICs cloud in-situ observations.

Keywords: Arctic ice clouds; microphysical and thermodynamical properties; ISDAC campaign.

2.1 Introduction

According to the Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC, 2007) and the Arctic Climate Impact Assessment (ACIA, 2005), the Arctic region is undergoing the most rapid and severe climate change on Earth. Since the 1960s, the Arctic mean annual surface air temperature has been increasing at about twice the global mean rate. The amplitude and future evolution of Arctic warming are highly uncertain. Cloud feedbacks have been recognized as the key source of uncertainty in climate sensitivity estimates using Global Climate Models (GCMs) (Dufresne and Bony, 2008). Clouds play a fundamental role both (1) in modulating atmospheric radiation by altering the solar and infrared radiation at the surface and at the top of the atmosphere and (2) in modulating the hydrologic cycles by the conversion of water vapor to liquid and solid particles. This is particularly critical in the Arctic, where interactions can be enhanced by the presence of aerosols (Grenier and Blanchet, 2010; Morrison et al, 2005). Shupe et al. (2011a) have shown that the annual cloud fraction derived from ground-based remote-sensors measurements increases from 58 to 83 % between winter and summer at six Arctic observatories over land or near land-ocean shore (Barrow, Atqasuk, SHEBA, Eureka, Ny´Alesund, Summit). The annual-mean net radiative effect of these Arctic clouds is a warming for most of the year, except for a short period during the summer (Intrieri et al., 2002). The surface cloud forcing strongly depends on cloud properties (phase, optical depth, water content, particle size, temperature and height), solar zenith angle, and surface albedo (Shupe and Intrieri, 2004).

Arctic cloud properties have been described in a number of observational studies using aircraft, ground-based remote sensors and satellites, especially related to the investigation of low-level mixed-phase cloud properties. However, Shupe (2011b) has shown that ice-only clouds are more common than mixed-phase clouds with similar longevity according to the annual-average statistics for the Western Arctic sites (Barrow, Eureka, SHEBA). Although some studies show that Ice Nuclei (IN), in the context of diamond dust (Intrieri and Shupe, 2004) and subvisible Arctic ice cloud properties (Lampert et al., 2009), have a small effect on the radiation budget at the surface, their existence could be important in the Arctic spring to (1) maintain mixed phase low clouds (Morrison et al., 2005, 2012), or (2) in winter when the warming resulting from the ≪cloud greenhouse effect (thermal)≫ is not balanced by the cooling resulting from the ≪cloud albedo forcing (solar)≫ (Girard and Blanchet, 2001; Shupe and Inrieri, 2004).

The formation and evolution of ice in clouds are still poorly understood in part because

of the complexity of ice particle nucleation processes. The processes by which ice forms and evolves in ice clouds were mostly investigated in mid- and upper-tropospheric ice clouds including wave and cirrus clouds (Lawson et al., 2001; Baker et al., 2006a; Lawson et al., 2006b; Sassen et al., 2001; Heymsfield et al., 2002). These studies suggest that ice particles in cirrus first go through a conversion from water vapor to liquid and solution droplets, which freeze at low temperatures to form polycrystalline ice particles by immersion and/or contact freezing (above -38 °C) or homogeneous freezing (below -37 °C) on deliquesced aerosols without the need for ice nuclei. However, the relative importance of each of the above-mentioned processes to the ice crystal nucleation in these ice clouds is still highly uncertain.

The joint detection characteristics of both the CloudSat radar and CALIPSO lidar recently reveal the existence of two Types of extended Ice Clouds (TICs) in the Arctic during the polar night and early spring (Grenier et al., 2009; Grenier and Blanchet, 2010). The type refers to the number of active instruments detecting the cloud; ice clouds of type 1 (TIC-1) are only seen by the lidar whereas ice clouds of type 2 (TIC-2) are seen by both the lidar and the radar. TIC-2 are further divided into TIC-2A and TIC-2B. TIC-2A are topped by a substantial layer of very small (radar-unseen) ice crystals (TIC-1). In contrast, TIC-2B are not overlaided by TIC-1. In this paper, TIC-1 and TIC-2A are not differentiated and therefore will be identified as TIC-1/2A.

According to Grenier et al. (2009), TIC-1/2A and TIC-2B clouds form preferentially in pristine and polluted environment respectively. Polluted air masses in the Arctic is associated with the long-range transport of anthropogenic pollution from the mid-latitudes, primarily originating from Eurasia (Law and Stohl, 2007; Hirdman et al., 2010), to the Arctic. Aerosol concentrations are the largest during winter and spring seasons by nearly 2 orders of magnitude (known as Arctic haze) as compared to summer due to favorable large-scale atmospheric circulation and few precipitations north of the polar front, thus limiting wet scavenging of aerosols (Sirois and Barrie, 1999). The dominant component of these pollutant-enriched aerosols is highly acidic sulphate (Barrie and Barrie, 1990; Quinn et al., 2007), which coats most of the aerosols of the accumulation mode during its long-range transport (Bigg, 1980). It has been shown that acid coating on dust aerosols substantially increases the onset ice supersaturation for ice nucleation (Eastwood et al., 2009; Chernoff et al., 2010; Sullivan et al., 2010). Blanchet and Girard (1994) have hypothesized that the decrease of the IN concentration in polluted air masses results to a smaller concentration of larger ice crystals, leading to precipitation (i.e. cloud regime TIC-2B), because of the reduced competition for the same available

moisture. Therefore, the ice crystal precipitation rate and the rate of dehydration of the lower troposphere increase while the water vapor and TIC-2B greenhouse effect decreases at the expense of non-precipitating ice clouds (TIC-1). At cold Arctic winter temperature, the greenhouse effect in the so-called dirty window (17 to 35 μm) is especially sensitive to atmospheric dehydration. Positive feedback is created between the mid- and lower-troposphere cooling and dehydration efficiency, increasing the production rate of cold and dry air masses. This process is referred to as the Dehydration Greenhouse Feedback (DGF) (Blanchet and Girard, 1994).

This research aims to characterize the microphysical properties of TIC-1/2A and TIC-2B clouds using airborne in-situ and satellite measurements. The observational dataset is from the Department of Energy (DOE) Atmospheric Radiation Measurement (ARM) Indirect and Semi-Direct Aerosol Campaign (ISDAC) (McFarquhar et al., 2011), which was conducted over the North Slope of Alaska (NSA), during April 2008. One of the main objectives of ISDAC project was to examine the influence of the arctic aerosol on cloud microphysical properties and on the surface energy balance. During ISDAC, the National Research Council of Canada (NRC) Convair-580 was equipped with 41 instruments including a complete set of dynamic, thermodynamic, radiation, aerosol and microphysical sensors. Twenty-seven scientific flights were performed under various weather conditions. Flight profiles consisted of spiral and ramped ascents and descents through clouds and constant altitude legs within and outside clouds between Barrow and Fairbanks. The strategy was also to coordinate flights with other aircrafts (NASA DC8, P-3B, B200, NOAA WP-3D) and satellite overpasses (A-Train).

For the first time, Arctic TIC-1/2A and TIC-2B clouds are characterized using in-situ observations. Although the dataset used in this study is rather limited, results of the cases studied in this paper provide the first detailed in-situ measurements of Arctic TICs and highlight the microstructure differences between TIC-1/2A and TIC-2B. These results represent an essential and important first step to relate previous modeling, remote sensing and laboratory studies mentioned above with TICs cloud in-situ observations.

This paper is organized as follow. In Section 2.2, ISDAC ice clouds are identified and airborne instruments used for the measurements are described. Section 2.3 presents the variability in number concentration of ice particles, ice water content and ice particles effective radius as a function of ice supersaturation and air temperature of all ice clouds investigated in this study. A detailed study on the microphysical and thermodynamical

properties of two case studies of ice clouds is also carried out in this section. A discussion and conclusions are presented in sections 2.4 and 2.5 respectively.

2.2 Observations and Methodology

2.2.1 Identification of ice clouds

The greatest challenge in the study of ice clouds observed during ISDAC is the discrimination of ice clouds from the mixed-phase clouds. Liquid water content (LWC) probes can strongly respond to ice particles too (King et al., 1978; Cober et al., 2001; Gultepe et al., 2001). To circumvent this problem, the Rosemount Icing Detector (RID) sensor was used to detect the presence of supercooled liquid water in ice and mixed-phase clouds. The RID probe measures the rate of voltage change (dV_R/dt mV.s^{-1}) converted from the decrease of the vibration's frequency of the cylinder due to the accumulation of ice on its surface. When the cylinder oscillation frequency reaches a minimum threshold value, the cylinder is heated to melt the ice (Mazin et al., 2001; Cober et al., 2001). According to Cober et al. (2001), the sensitivity threshold of the RID signal for the presence of supercooled liquid water is 2 mV.s^{-1} with higher values in conditions with air temperature (T_a) below -5 °C (Mazin et al., 2001; Gultepe et al., 2001). To detect the presence of ice particles, we used the optical array probe 2DS covering the largest spectrum of particles with diameters ranging between 10 μm to 1280 μm. Because of a common lower limit for instruments in measuring low concentrations of small ice crystals, ice clouds with an ice crystal number concentration (N_{ic}) smaller than 0.01 L^{-1} are not taken into account. Therefore, in our study, clouds with $T_a <$ -5 °C, $N_{ic} >$ 0.01 L^{-1} and $dV_R/dt <$ 2 mVs^{-1} were considered as ice clouds. Figure 2.1 shows the algorithm used to identify the thermodynamic phase (ice, liquid or mixed) of the investigated clouds. This analysis is performed using 30 s-averaged values of T_a, N_{ic} and dV_R/dt. This algorithm was applied for all ISDAC data and used to select ice clouds investigated in this study. Ice clouds with temperature warmer than -30±0.5 °C are not included in the analysis. Table 2.1 shows the time interval of all selected ice cloud profiles. Ice clouds may contain a trace amount of liquid water are identified in Table 2.1. They are defined as clouds in which some instantaneous (1 s) RID values within a 30 s average are larger than 2 mV.s^{-1}. One instantaneous (1 s) RID value larger than 2 mV.s^{-1} can also be considered as noise. The 30 s averaged RID value remains however below this threshold.

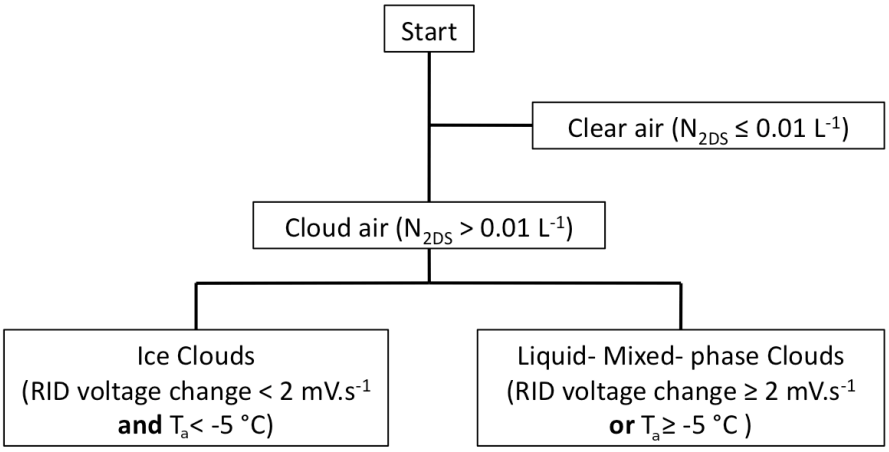

Figure 2.1 Algorithm used to identify the phase (ice-, liquid- or mixed-phase cloud) of each 30-s period of in situ data.

2.2.2 Airborne thermodynamical, microphysical and aerosol instruments

Instruments used to measure cloud thermodynamic properties were the Rosemount 102 and the reverse flow temperature probes for the air temperature; and the EG&G chilled-mirror for the relative humidity with respect to liquid water and ice (Gultepe and Starr, 1995). The EG&G hygrometer uses a chilled mirror to determine dew or frost point. The dry and clean mirror is monitored by an optical sensor and is cooled until the moisture condenses on it. The optical sensor detects changes in the reflective properties of the mirror caused by moisture and sends a signal to the cooling system to reduce the current and allow the mirror to warm up. This cycle continues until a layer of constant moisture thickness is formed on the mirror surface. The temperature at which this stability is reached is the dew point (above 0 °C) or the frost point (below 0 °C) if within the ice clouds. For all ice clouds defined in Table 2.1, temperature differences between both temperature sensors indicate that the averaged uncertainty is about ±0.5 °C Figure (2.2). Air temperature measurements from the reverse-flow temperature probe were used in this study. The uncertainty of the derived relative humidity ranges from 4.7 % to 10.9 % at cold temperatures (Lin and Hubbard, 2003).

The main parameters to describe the cloud microphysical and optical properties are the cloud particle size distribution (PSD) and the bulk quantities (total number concentration of ice crystals (N_{ic}), extinction coefficient (σ_{ext}), ice water content (IWC) and ice crystal effective radius (R_{ei})). Available instruments to measure individual cloud parti-

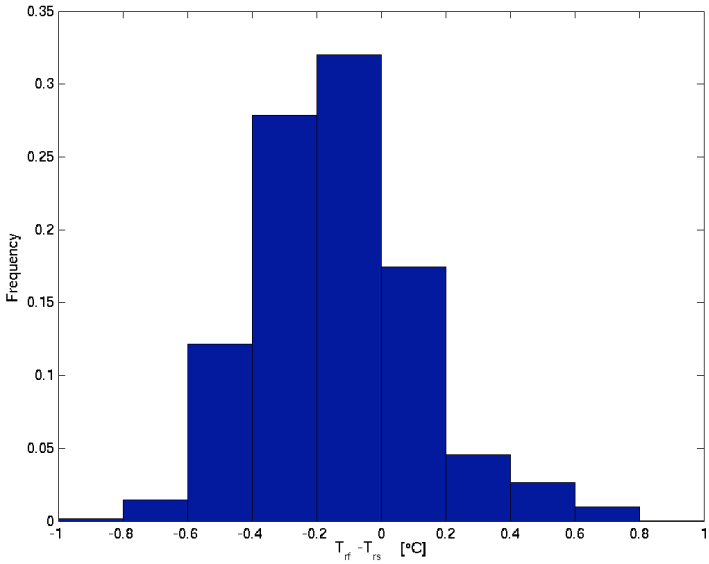

Figure 2.2 Distribution of the temperature differences between the Rosemount 102 (T_{rs}) and the reverse flow temperature (T_{rf}) probes for all ice clouds defined in Table 2.1.

Table 2.1 Time and spatial coordinates of the ice cloud profiles selected by the algorithm of figure 2.1 for which the cloud temperature drops below -30±0.5 °C during the ISDAC measurement campaign.

Date (y/m/d)	Flight Nbr	Place	Flight Type	ΔT Ice Cloud (IC) (h:m:s)	IC may contain H_2O_{liq}	MP cloud in lower layers	Code
08/04/01	F9	Barrow	Descent Spiral	23:14:00 23:31:30	No	Yes	F9
08/04/04	F11	Barrow	Descent Spiral	19:33:30 19:51:00	No	Yes	F11
08/04/05	F12	Barrow	Ascent Spiral	01:21:00 01:33:30	No	No	F12
08/04/05	F13	Fairbanks	Ascent Rampe	17:40:30 17:59:30	Yes	Yes	$F13_1$
08/04/05	F13	Barrow	Descent Spiral	19:18:00 19:37:30	Yes	Yes	$F13_2$
08/04/05	F13	Barrow	Descent Spiral	20:35:30 20:55:00	Yes	Yes	$F13_3$
08/04/05	F14	Barrow	Descent Spiral	23:07:00 23:23:00	Yes	Yes	F14
08/04/08	F15	Fairbanks	Ascent Rampe	15:00:30 15:16:00	No	No	F15
08/04/14	F20	Barrow	Descent Spiral	19:51:30 20:14:00	Yes	No	F20
08/04/15	F21	Barrow	Ascent Spiral	00:55:30 01:16:00	Yes	No	F21
08/04/19	F24	Barrow	Ascent Rampe	01:23:30 01:41:30	Yes	Yes	F24
08/04/25	F29	Barrow	Ascent Rampe	02:27:00 02:38:30	No	No	F29

cles were the FSSP-100 (3-45 μm), 2DC (25-800 μm) and 2DP (200-6400 μm) developed by Particle Measuring Systems (PMS); the CDP (2-50 μm), CAS (1-50 μm) and CIP (15-1550 μm) developed by Droplet Measurement Technologies (DMT); and the 2DS (10-1280 μm) and CPI (15-2500 μm) developed by Stratton Park Engineering Company (SPEC). These instruments measure the number concentration and size distribution of ice crystals. The bulk quantities are derived from the measured size distribution as described in section 2.4.1. The NRC Convair-580 was also equipped with a CPI probe to record images of particles on a charge-coupled device (CCD) image sensor in a digital camera, that passes through the intersection of the two laser beams (Lawson et al., 2001).

Previous studies investigating the performance of cloud probes in ice conditions suggest

that shattering of large ice crystals on the inlets and tips has a strong impact on the CAS cloud particle size distribution measurements compared to the CDP, CPI and 2DS (McFarquhar et al., 2007b; Jensen et al., 2009; Protat et al., 2010) and on the FSSP cloud particle size distribution measurements compared to the CDP and 2DS probes (McFarquhar et al., 2011). The impact of shattering is likely to be small for the CDP probes (McFarquhar et al., 2007b; Protat et al., 2010; Lance et al., 2010; McFarquhar et al., 2011). Shattering artifacts can also occur in all of the Optical Array Probes (OAPs) as a result of large crystals hitting the detector arms (Field et al., 2006). Techniques currently used to reduce the effects of shattering include the use of redesigned probe tips and algorithms to eliminate closely spaced particles, which are assumed to result from shattering. The effectiveness of a technique rather than the other is still being evaluated (Korolev et al., 2010; Lawson, 2011). Shattered artifacts have been removed from the 2DS, 2DC and 2DP data using algorithms to eliminate closely spaced particles of sizes smaller than 50 μm. 2D-S arrival time algorithm was developed and applied by Paul Lawson's group at SPEC (Lawson et al., 2011 – Appendix B). 2D-C and 2D-P arrival time algorithm developed and applied by Greg McFarquhar's group at the University of Illinois. However, Korolev et al. (1998) and Lawson et al. (2006a) have shown that particles smaller than approximately 100 μm in diameter collected by the 2DC have counting and sizing errors. For these reasons, data from the FSSP and CAS probes, and cloud particle size distributions from the 2DC probe for diameters smaller than 150 μm are not used in this study. It is important to note that every instrument used to measure individual cloud particles can be subject to shattering signatures and/or other sources of contamination and limitations specific to the probe. Therefore a combination of instruments is needed to detect a wide range of cloud particle population.

The aerosol number concentration (N_a) was measured with the CPC-3775 ($>$ 0.004 μm) developed by Trust Science Innovation (TSI) and the PCASP (0.12-3 μm) developed by PMS. Note that data from the CPC-3775 was good for lower altitudes only ($<$ 3.5 km above mean sea level) due to instrument limitation. Data from the PCASP were missing for flights F20 and F21. A single mass spectrometer (SPLAT-II) measuring the concentration and chemical composition of aerosols (Zelenyuk et al, 2010) and a continuous flow diffusion chamber (CFDC) measuring the IN concentration were also available in the aircraft. Unfortunately, the CFDC was not functional for flights prior to April 8th, 2008 (including Flight 8-15). SPLAT II has allowed to characterize background, activated and interstitial particles with their chemical composition in a mixed-phase stratocumulus sampled on April 26th, 2008 during ISDAC. Information

that can provide this instrument could be crucial in our study, however, since the concentration of ice crystals in ice clouds is typically 2 to 4 orders of magnitude lower than that of droplets in warm clouds, the characterization of IN, in field measurements, is drastically more difficult than the characterization of CCN. Then aerosol chemical composition from SPLAT-II for F9 and F21 were not available at the beginning of the analysis (Alla Zelenyuk, personal communication).

2.2.3 Performance of instruments measuring individual cloud particles

In this section, statistical comparisons are made to evaluate the performance of ice crystal measurements and derived products from the FSSP, CDP, 2DS and 2DC during ISDAC. Figure 2.3 shows a comparison between the FSSP ($N_{ic:10-50,FSSP}$), CDP ($N_{ic:10-50,CDP}$) and 2DS ($N_{ic:10-50,2DS}$) ice crystal number concentrations for diameters ranging from 10 to 50 μm, at air temperature below -15 °C, and the 2DC ($N_{ic:150-800,2DC}$) and 2DS ($N_{ic:150-800,2DS}$) ice crystal number concentrations for diameters ranging from 150 to 800 μm, during all ice clouds considered in this study (see Table 2.1). We found no correlation between $N_{ic:10-50,FSSP}$ and $N_{ic:10-50,2DS}$ (Figure 2.3a) and a correlation of R^2=0.77 between $N_{ic:10-50,CDP}$ and $N_{ic:10-50,2DS}$ (Figure 2.3b). Nevertheless, only 25.7 % of the data points were non-zero for the CDP data against 72.5 % for the 2DS data in this size range. On the other hand, a better correlation (R^2=0.82) is obtained between $N_{ic:150-800,2DS}$ and $N_{ic:150-800,2DC}$ for all ice clouds (Figure 2.3c). Using the CDP to measure ice crystal PSDs has not been well established for ice clouds. It is very difficult to give a definitive answer as to whether it is better to use a 2DS or CDP in the size range between 10 and 50 μm because 2DS measurements may be affected by particle shattering in that size range. There are a lot of uncertainties in the measurement of small ice crystals. That is why it is generally suggested to use different measurements to give a better idea of the upper and lower bounds of the concentrations in various different size ranges (Greg McFarquhar, personal communication). However, in this study, the 2DS is preferred for diameters ranging from 10 to 50 μm since the CDP probe was calibrated for liquid water during ISDAC. During ISDAC, 2DS was also the only instrument that can measure ice crystals with diameters ranging from 50 to 150 μm, a size range that has been traditionally difficult to measure. Therefore, the two combinations of the PSDs used in this study were the following: (1) 2DS for N_{ic} ($10 < D < 150$ μm), 2DC for N_{ic} ($150 < D < 800$ μm), 2DP for N_{ic} ($D > 800$ μm) and (2) 2DS for N_{ic} ($10 < D < 800$ μm), 2DP for N_{ic} ($D > 800$ μm).

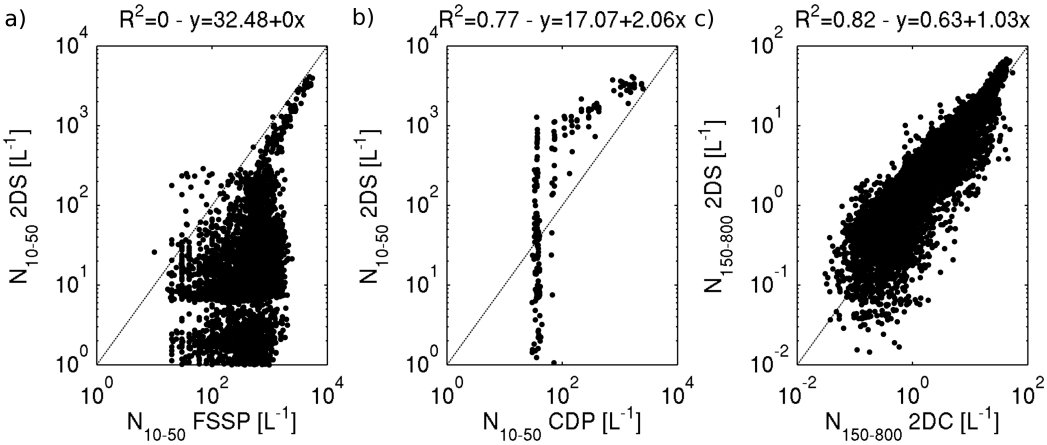

Figure 2.3 FSSP concentration as function of 2DS concentration (a), CDP concentration as function of 2DS concentration (b) (10-50 μm) for ice clouds defined in the Table 2.1 with T_a < -15 °C. 2DC concentration as function of 2DS concentration (c) (150-800 μm) for ice clouds defined in the Table 2.1.

2.2.4 Derived Bulk Parameters

This section describes how the ice cloud bulk properties were determined from the 2DS and 2DC-P probes data. The total number of ice particle (N_{ic}) from the three instruments was directly estimated from the size spectrum as a function of the particle diameter, $N_i(D_i)$.

Using the 2DS probes data, the crystal mass (m_i in mg) was estimated either from the ice crystal projected area (A_i in mm^2) using the equation of Baker and Lawson (2006b) (noted BL06):

$$m_i = 0.0155 A_i^{1.218} \tag{2.1}$$

or from the equivalent volume of a sphere with diameter (D_i) of the ith size bin. The smaller estimate is used. The projected area is based on the area that is directly measured by the 2DS probe. Area and mass are summed to yield time series of, respectively, extinction coefficient and ice water content. Assuming that particles are larger than the incoming radiation, a factor 2 is applied for the extinction coefficient calculation using Mie theory.

Using the 2DC and 2DP probes data, the crystal mass in each size interval is also

estimated as a function of the crystal maximum diameter (D_i in mm) using

$$m_i = \alpha D_i^{\varphi} \tag{2.2}$$

where α and φ are habit-dependent coefficients (Heymsfield et al., 2002). We used $\alpha = 0.022$ and $\varphi = 2.0$ following Mitchell et al. (1990) (noted M90). The uncertainties in the bulk measurements are mainly due to uncertainties on the recognition of the type of particle in the choice of mass-diameter relationship. The dataset used to define both BL06 and M90 relationships was obtained by collecting ice particles falling from winter storms in the Sierra Nevada of California in 1987 (Mitchell et al., 1990). Coefficients used in equations (1) and (2) represent all ice particles types (all shapes included) sampled in the M90 dataset. We assumed that the M90 and BL06 assumptions hold for the similar temperature and relative humidity seen during ISDAC. However we must keep in mind that certain types of particles in our study wouldn't actually match a decent fraction of those included in the dataset of Mitchell et al. (1990). For example, crystal type such as bullet rosette is not represented in the M90 dataset, while one of the two ice clouds studied in detail in section 2.3.3 is mainly composed of this crystal type. The special software to perform habit classification and calculation of the area, volume, and other characteristics of the particles could not be used since it is not available by other scientists. Thus systematic errors can be introduced on a flight segment (in which the particle shape does not correspond with the selected D-mass relationships) and thus be particularly significant in the derived bulk measurements.

The ice water content is then obtained using the following equation:

$$IWC = \sum_{i=1}^{n} m_i N_i(D_i) \triangle D_i \tag{2.3}$$

where $\triangle D_i$ the width of the ith size bin and n the number of size bins. Since the projected area is unknown, the equivalent diameter (D_{eq}) is calculated to obtain the extinction coefficient. $D_{i,eq}$ is the diameter of an equivalent sphere having the same mass as an ice crystal mass of a given size bin (m_i) and is given by:

$$D_{i,eq} = \left(\frac{6 m_i}{\pi \rho_{ice}} \right)^{1/3} \tag{2.4}$$

where ρ_{ice} is the bulk density of ice, which was assumed to be equal to 0.91 g.cm^{-3}.

The extinction coefficient is proportional to the second power of particles size and is

given by:

$$\sigma_{ext} = \sum_{i=1}^{n} 2D_{i,eq}^2 N_i(D_i) \triangle D_i \tag{2.5}$$

The ice crystal effective radius (R_{ei}) is obtained by dividing the third and second powers of the ice crystal size distribution as follows:

$$R_{ei} = 1/2. \frac{\sum_{i=1}^{n} D_{i,eq}^3 N_i(D_i) \triangle D_i}{\sum_{i=1}^{n} D_{i,eq}^2 N_i(D_i) \triangle D_i} \tag{2.6}$$

where $D_{i,eq}$ is for equivalent diameter of ice spheres having the same volume. $N_i(D_i)$ is either obtained from the integration of 2DS, 2DC, and 2DP data or from the integration of 2DS and 2DP probes data (Eqs. 2.2 and 2.4).

Figure 2.4 shows a comparison of the ice water content (a, b), the extinction coefficient (c, d) and the effective radius (e, f) obtained from the two combinations of the PSDs defined previously on the set of points of ice clouds defined in Table 2.1. Data are averaged over 30 s periods. We found very good correlation ($R^2 \geq 0.92$) between both PSD combinations, i.e. between the 2DS and 2DC probe data for diameters ranging from 150 to 800 μm. The 2DS and 2DC concentration and IWC differ by a factor 1.4. As a result, the 2DS extinction coefficient should be about 1.4 times larger when compared to the 2DC extinction coefficient. A factor of 2 is obtained between both extinction coefficients, implying that the 2DS's area per particle is a bit too large. This means that the 2DS instrument does not agree within experimental uncertainty with respect to the values of the extinction coefficient but there is an overestimation of the retrieved 2DS's area per particle. Differences of the ice water content, the extinction coefficient and the ice effective radius do not exceed ± 0.02 g.m^{-3}, ± 1.0 km^{-1} and ± 25 μm respectively with a standard deviation of 0.057 g.m^{-3}, 0.26 km^{-1} and 8.18 μm (Figure 2.4b, d, f). The distribution of IWC, σ_{ext} and R_{ei} differences suggests that the average random error in the bulk measurements can be estimated as approximately ± 0.01 g.m^{-3} for IWC, ± 0.5 km^{-1} for σ_{ext} and ± 15 μm for R_{ei} (frequency > 80 %). Nevertheless, it was assumed that the uncertainties on the PMS measurements of the concentration of ice crystals, the particle size, the extinction coefficient and the ice water content are respectively: 50 %, 25 %, 60 % and 75 % (Gayet et al., 2002). These uncertainties will be accounted for in the interpretation of the results.

Other «bulk microphysical measurements» such as the Nevzorov (TWC, LWC), King (LWC) and CSI (TWC) probes were not used either because they were not available

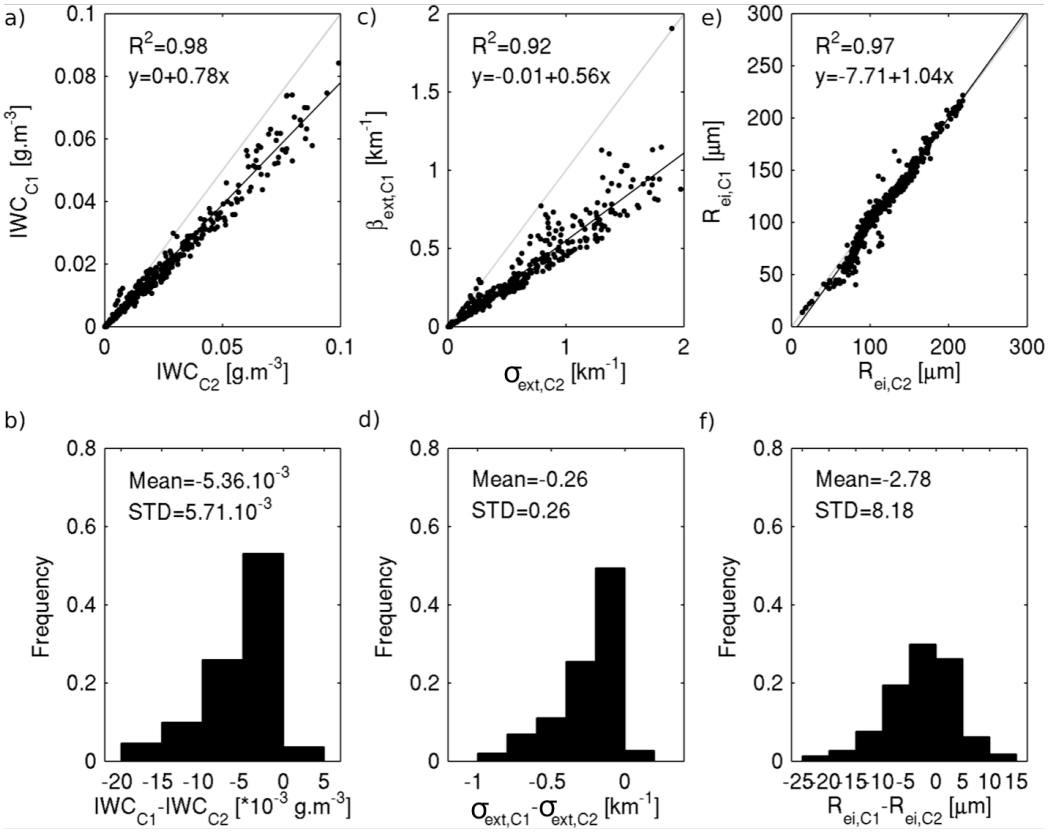

Figure 2.4 Comparison of IWC (a,b), σ_{ext} (c,d) and R_{ei} (e,f) from combinations (1) 2DS for $N_{10<D<150\mu m}$, 2DC for $N_{150<D<800\mu m}$, 2DP for $N_{D>800\mu m}$ and (2) 2DS for $N_{10<D<800\mu m}$, 2DP for $N_{D>800\mu m}$ for ice clouds defined in the Table 2.1.

at the beginning of the analysis or missing for some flights.

2.2.5 Remote sensing data

ISDAC flight missions were coordinated with Cloudsat and CALIPSO satellite overpasses. Satellite measurements provide useful information to identify cloud particle size and phase. They are valuable also in extrapolating some of the campaign's results to the broader Arctic region. Due to their respective wavelengths, radar and lidar are not sensitive to the same hydrometeore sizes. The lidar, with a relatively short wavelength, can detect small particles (aerosols, liquid drops, ice crystals) while the radar is more sensitive to larger particles ($> \sim 30$ μm). However, the lidar signal becomes strongly

attenuated when the optical depth approaches ∼3 (this value can vary depending on instrument specifications) (Sassen and Cho, 1992). As a result, the lidar will not detect optically thin clouds if an optically thick cloud obstructs the lidar beam but radar measurement can penetrate more deeply ice clouds when lidar signal is extinguished.

In this study, we use the variational synergistic algorithm (Varcloud) that was developed by Delanoë and Hogan (2008). This algorithm combines both radar and lidar observations to retrieve IWC, extinction and effective radius in regions of the cloud detected by just one of these two instruments. The ice particle mass is assumed to follow the Brown and Francis (1995) mass-D relationship and R_e is derived using (Foot, 1988) :

$$R_e = \frac{3}{2}.\frac{IWC}{\rho_{ice}\sigma_{ext}} \tag{2.7}$$

These operational products are called DARDAR and are available at the French data centre ICARE in France. Retrieved properties are given at the CloudSat horizontal resolution (about 1.4 km) and 60 m vertical resolution. Details of the method can be found in Delanoë and Hogan (2008, 2010). The RMS error in $\ln IWC$, $\ln\sigma_{ext}$ and $\ln R_e$ (approximately equivalent to the fractional error in IWC, σ_{ext} and R_e, respectively) are available in DARDAR products and derived according to the methodology of Delanoë and Hogan (2008). These errors are associated with each measurement in the DARDAR database. Within the both TICs described and discussed in section 2.3.3, values of the RMS error in $\ln IWC$, $\ln\sigma_{ext}$ and $\ln R_e$ from DARDAR product ranging from 10 to 30 % for IWC, from 20 to 40 % for σ_{ext} and less than 20 % for R_e.

Delanoë et al. (2012) have demonstrated the capability of DARDAR to retrieve cloud properties for an ice Nimbostratus cloud observed on April 1, 2008 during the POLARCAT (Polar Study using Aircraft, Remote Sensing, Surface Measurements and Models, of Climate, Chemistry, Aerosols, and Transport) campaign. They have shown that the synergetic combination of radar and lidar allows a better retrieval than the stand-alone retrievals when compared to the in-situ measurements. DARDAR (raDAR/liDAR) can be used most effectively for optically thin clouds due to lidar attenuation. Unfortunately, in-situ measurements cannot be used as a qualitative evaluation of the satellites products since the colocation and the large inhomogeneities in the cloud can be sources of important errors. But they can give us a very good estimate of the order of magnitude for IWC, σ_{ext} and R_{ei} retrievals.

2.3 Results

2.3.1 Selected ice clouds

The following two criteria were considered to select ice cloud samples in our study. Firstly, in-situ measurements must fully cover the vertical extent of a given ice cloud including cloud top where ice nucleation is most likely to occur. The MicroPulse Lidar (MPL, Campbell et al., 2002) and the Millimeter Cloud Radar (MMCR, Moran et al., 1998) based at Barrow were used for flights made nearby to ensure that in-situ measurements were performed from cloud top to cloud base. For flights nearby Fairbanks, this verification was made using the CALIOP lidar on board the CALIPSO satellite, closest in time and space from the airborne measurements. Flights for which the cloud top height could not be verified were rejected from the analysis. The second criterion is to select ice clouds with similar ice water content to avoid comparing clouds having too different ice mixing ratios. Ice clouds are rejected if the ice water content deviates by ±100 % of the mean ice water content of the selected ice clouds (i.e. $IWC_{mean} \sim$ 0.01±0.01 g.m^{-3} for $RH_{Ice} > 100$ %).

Figure 2.5a shows the ice water content (IWC) derived from the combination 2 (2DS+2DP) as a function of relative humidity over ice (RH_{Ice}). Each point on this figure represents the averaged value of the ice water content within a 2 % RH_{Ice} interval for all of the selected ice clouds profiles satisfying our first criterion (see Table 2.1). This study is focused on the area of the ice nucleation, therefore the set of points where RH_{Ice} is less than 100 % in Figure 4 are not shown. Measurements derived from the combination 1 (2DS+2DC+2DP) (not shown) give similar results. Figure 2.5a shows that F13$_2$, F13$_3$, F14 and F24 do not satisfy the second criterion with IWC values larger by a factor of 4 to 8 compared to the averaged IWC value observed in the 7 other ice clouds at high relative humidity with respect to ice. They were therefore rejected from our analysis.

Seven ice clouds (F9, F11, F12, F15, F20, F21 and F29) satisfying both selection criteria were selected for the analysis. One can distinguish two groups of ice clouds: the first one (F9, F11, F12 and F29) with a large concentration (exceeding 10 L^{-1}) of small ice crystals (smaller than 110 μm) and a second group (F15, F20 and F21) with a relatively small concentration (below 10 L^{-1}) of large ice crystals (larger than 110 μm). Table 2.2 shows the average ice crystal number concentration, the ice crystal effective radius and the aerosol concentration for the selected ice clouds. These two different groups of ice clouds in terms of ice crystal number concentration and effective radius suggest that

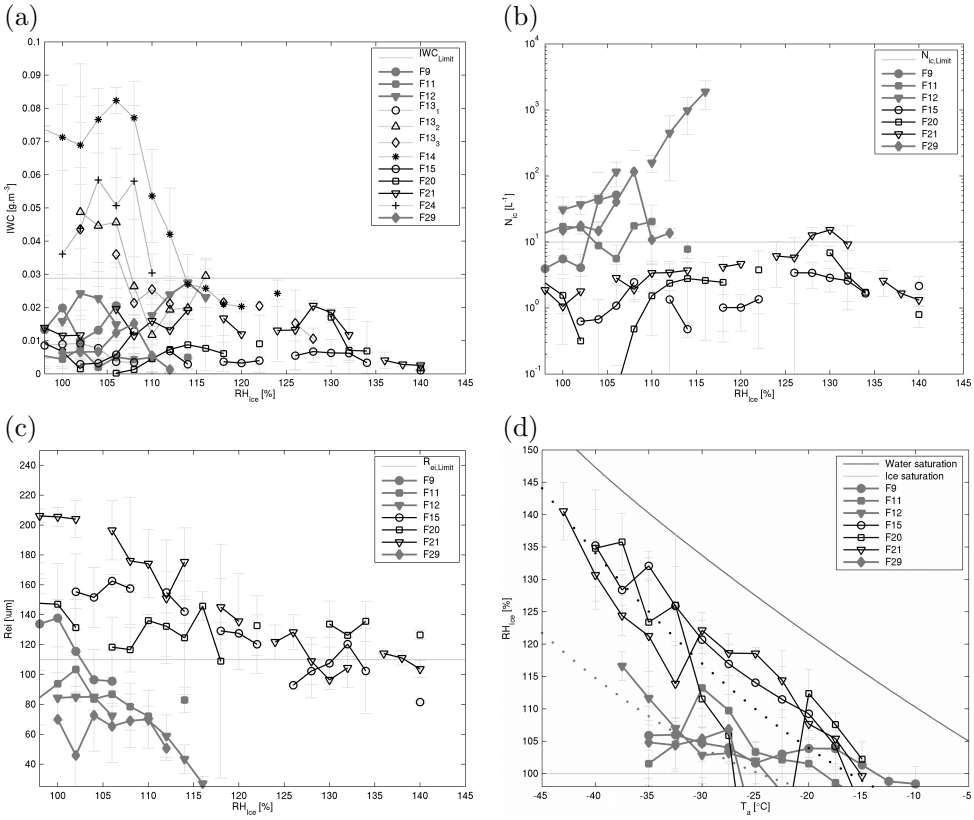

Figure 2.5 IWC (a), N_{ic} (b) and R_{ei} (c) as function of RH_{Ice} averaged over 2 % intervals. And RH_{Ice} as function of T_a averaged over 2.5-°C intervals (d), vertical lines represents the standard deviation.

Table 2.2 Flight code, cloud top height and mean $\overline{N_{ic}}$ and $\overline{R_{ei}}$ for $RH_{Ice} > 100$ % of ice clouds of similar IWC (i.e. < 0.03 g.m^{-3}).

Flight code	IC Top Height*	$\overline{N_{ic}}$	$\overline{R_{ei}}$	$\overline{N_{ic}}$>10L^{-1} $\overline{R_{ei}}$<110μm	$\overline{N_{ic}}$<10L^{-1} $\overline{R_{ei}}$>110μm	N_a***
F9	6646.5	26.1±24.9**	111.3±19.9	x		99.8±14.9
F11	6648.5	13.4±5.8	85.9±10.2	x		44.8±9.9
F12	7027.4	463.6±660.9	65.7±21.4	x		206.5±127.0
F15	6690.9	1.8±1.0	127.2±26.1		x	-
F20	6502.6	2.2±1.8	129.7±10.6		x	-
F21	6748.5	4.9±3.9	141.4±38.3		x	-
F29	7057.8	32.7±38.1	63.4±10.6	x		105.0±29.8

* Ice cloud top height (m) from 30 s-period airborn data
** ± Standard deviation of the points of Figures 3
*** Aerosol concentration (cm^{-3}) observed in clear air just before entering the cloud (1-mn period averaged)

the first and second group of ice clouds are representative of the TIC-1/2A and TIC-2B discussed above. The aerosol concentration observed in clear air just before entering the clouds show that these air masses were relatively clean with concentrations around or below 100 cm^{-3} with the exception of the flight F12 with larger concentrations. It should be noted that there were no PCASP measurements during flights F20 and F21 and no available measurements in clear air close enough to the cloud during flight F15.

2.3.2 N_{ic} - R_{ei} versus RH_{Ice} - T_a measurements: a statistical approach

Figure 2.5b shows N_{ic} derived from the combination 2 as a function of RH_{Ice}. For the first type of ice clouds (TIC-1/2A) (F9, F11, F12 and F29 in gray full lines), N_{ic} tends to increase with increasing RH_{Ice} in flights F9 and F12 while no clear variation of N_{ic} with RH_{Ice} is obtained in F11 and F29. In the second type of ice clouds (TIC-2B) (F15, F20 and F21 in black full lines), N_{ic} is mostly independent of RH_{Ice}. N_{ic} is systematically larger by more than one order of magnitude in TIC-1/2A when compared to TIC-2B for all RH_{Ice} values.

Figure 2.5c shows the variation of R_{ei} as a function of RH_{Ice}. TIC-2B R_{ei} is larger by a factor of 2 to 3 for all RH_{Ice} when compared to TIC-1/2A R_{ei}. While there is a clear tendency for R_{ei} to decrease with increasing RH_{Ice} for all ice clouds, R_{ei} decreases more rapidly with RH_{Ice} in TIC-1/2A when compared to TIC-2B R_{ei}, which never reaches values below 110 μm.

Figure 2.5d shows the average of RH_{Ice} as a function of T_a measured in all selected ice clouds profiles. According to Korolev and Isaac (2006), the relative humidity over ice tends to increase when the air temperature decreases with a behavior that may be related to the type of ice cloud. In agreement with studies of Korolev and Isaac (2006) and Korolev and Mazin (2003), RH_{Ice} increases with the decrease of air temperature. RH_{Ice} values are generally between the ice and liquid saturation points. The interesting finding is that the behavior of the increase in RH_{Ice} with decreasing T_a appears to follow two patterns at colder temperature and $RH_{Ice} > 100$ % depending on the type of the ice cloud. In TIC-1/2A (F9, F11, F12 and F29), which are composed by a large concentration of small ice crystals, RH_{Ice} never exceeds 120 % (gray backslash). In TIC-2B (F15, F20 and F21), which are composed of a low concentration of relatively large ice crystals, RH_{Ice} is often larger than 120 % (black backslash) at relatively cold temperature. The ice supersaturation in TIC-2B is 15 % to 20 % larger than in TIC-1/2A depending on the air temperature.

High ice supersaturation has also been observed in previous campaigns (Krämer et al. 2009 and references therein). Krämer et al. (2009) have reported high RH_{Ice} in tropical cirrus clouds at very cold temperatures. They also reported a smaller N_{ic} and larger R_{ei} for these clouds. However, in-cloud temperatures (-90 to -40 °C) were colder than the temperatures of our selected ice clouds (mostly above -40 °C). It is therefore difficult to compare with our high RH_{Ice} selected clouds since the ice nucleation processes are likely to be different. For few warmer cases (-43 to -33 °C), Krämer et al. (2009) reported RH_{Ice} varying between 100 and 120 %, which is similar to the 4 TIC-1/2A investigated in this paper. Lawson et al. (2008) have also reported high RH_{Ice} at very cold temperatures within subvisible cirrus clouds observed during the Costa Rica Aura Validation Experiment in winter 2006. Results showed that they contained a few particles that were significantly larger (by about 100 μm) than the observations reported from the earlier measurements. Also, chemistry measurements suggested the presence of sulfates mixed with organics whithin these observed subvisible cirrus.

2.3.3 Case studies

2.3.3.1 Case overview and meteorological context

Many factors can affect the $\ll N_{ic}$, IWC or R_{ei} - T_a or $RH_{Ice} \gg$ relationships including nucleation type (homogeneous freezing, immersion/condensation freezing, contact freezing, deposition nucleation), processes of collision/aggregation and ice particle growth

rates as well as vertical velocity. To better understand the physical processes explaining the differences between TIC-1/2A and TIC-2B, two ice clouds have been further investigated. The first one (TIC-1/2A - F9) is characterized by a relatively small RH_{Ice} and made up of relatively high concentration of small ice crystals while the second one (TIC-2B - F21) is characterized by a high RH_{Ice} and a low concentration of relatively large ice crystals. These two ice clouds have a vertical extent from 0 to 6.7 km height, temperature reaching low values above -30.0 ± 0.5 °C and ice water content never exceeding 0.03 g.m^{-3}. To better understand both types of ice clouds, the vertical variability of bulk and thermodynamic properties, the particle size distribution and the synoptic context in which they form are investigated. These two deep glaciated clouds were recorded on two spirals over the Barrow site; the flight F9 downdraft spiral on April 1st, 2008 from 23:13:43 UTC to 23:45:43 UTC (Figure 2.6d), and the flight F21 updraft spiral on April 15th, 2008 from 00:55:26 UTC to 01:17:23 UTC (Figure 2.7d).

Figures 2.6 and 2.7 show the equivalent potential temperature with the mean sea level pressure (a), the geopotential at 500 hPa (b), the horizontal wind at 700 hPa (c) and the vertical profile of flight trajectory (white color) with the equivalent potential temperature and the mixing ratio (d) over Alaska from the European Center for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) operational analysis for both flights. On April 1st, 2008 (F9), the polar jet stream moved across Alaska from the southwest to the northeast (Figure 2.6b). A low-pressure system, formed near Japan, follows a north-northeastward path toward Alaska before dissipating over the Bering Strait (Figure 2.6a). Winds at 700 hPa show a southerly flow over Alaska reaching ∼10 m.s^{-1} (Figure 2.6c) over Barrow. Vertical profiles of equivalent potential temperature and mixing ratio show that the F9 profile is in an area close to a warm front, characterized by theta-e contours almost vertical near the surface with a gradient gradually shifting to the west with height. The formation of cirrostratus in the F9 profile is therefore probably associated to the warm front.

On April 15th, 2008 (F21), the synoptic pattern is dominated by a decaying closed low-pressure system coming from the Chukchi Sea (Figure 2.7a and b), which dissipates over the NSA. The airborne measurements of spiral F21 over the Barrow site are made in the center of this decaying low-pressure system. The vertical profile of vertical velocity shows a weak subsiding vertical motion (Figure 2.8). The easterly winds are weak (∼5 m.s^{-1}) (Figure 2.7c) when compared to the F9 case study (April 1st, 2008). The equivalent potential temperature and mixing ratio do not vary much in the horizontal, which is characteristic of a homogeneous air mass (Figure 2.7d).

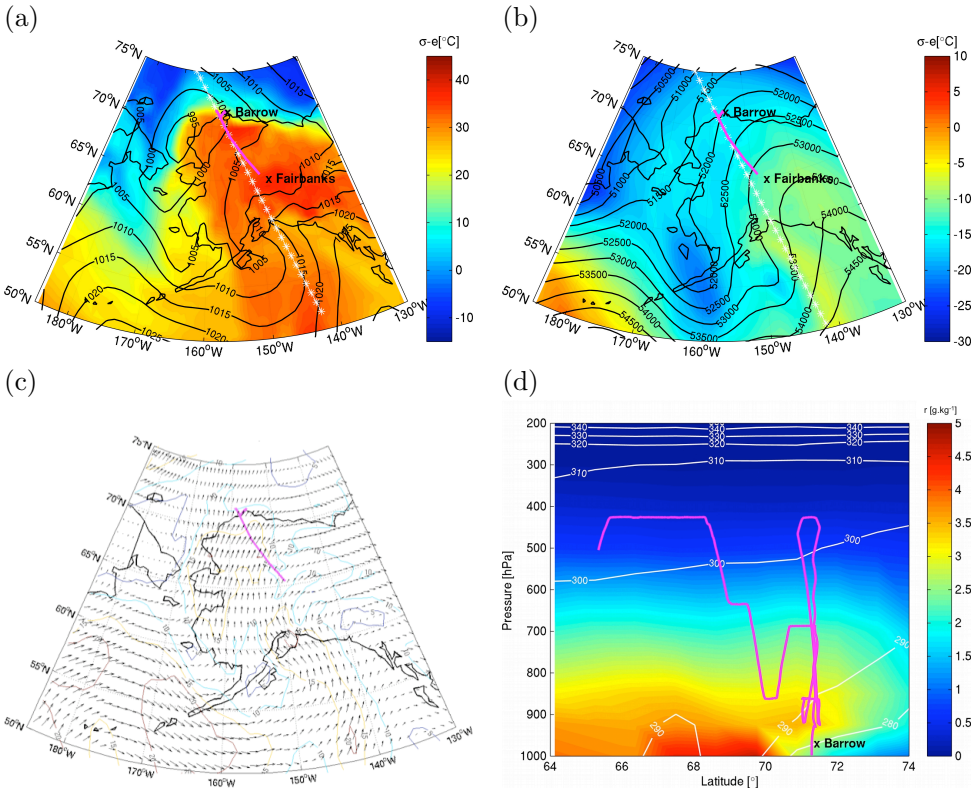

Figure 2.6 Equivalent potential temperature (°C) with mean sea level pressure (hPa) (a) and geopotential ($m^2.s^{-2}$) at 500 hPa (b); module and direction of horizontal wind at 700 hPa (c) and vertical profile of flight F9 (in white full line) with equivalent potential temperature (K) and mixing ratio ($g.kg^{-1}$) over Alaska at 00:00:00 UTC (2 April 2008). A-Train overpass track (star line) is also shown at 22:37:14 UTC (1 April 2008).

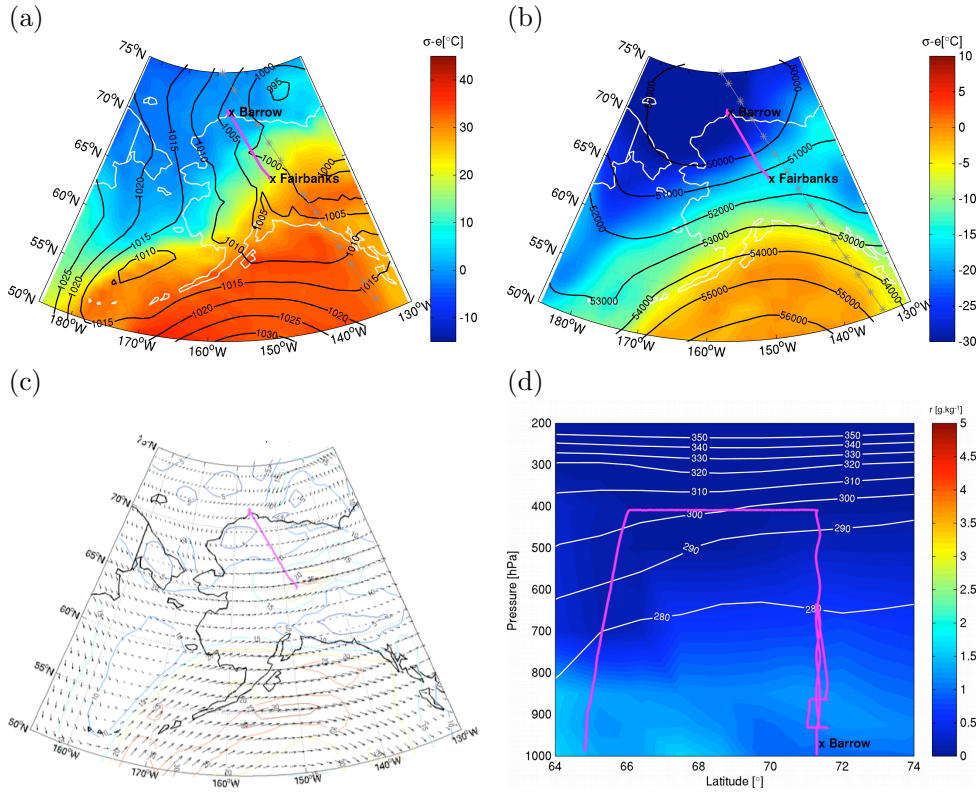

Figure 2.7 Equivalent potential temperature (°C) with mean sea level pressure (hPa) (a) and geopotential ($m^2.s^{-2}$) at 500 hPa (b); module and direction of horizontal wind at 700 hPa (c) and vertical profile of flight F21 (in white full line) with equivalent potential temperature (K) and mixing ratio ($g.kg^{-1}$) over Alaska at 00:00:00 UTC (15 April 2008). A-Train overpass track (star line) is also shown at 22:06:30 UTC (14 April 2008)

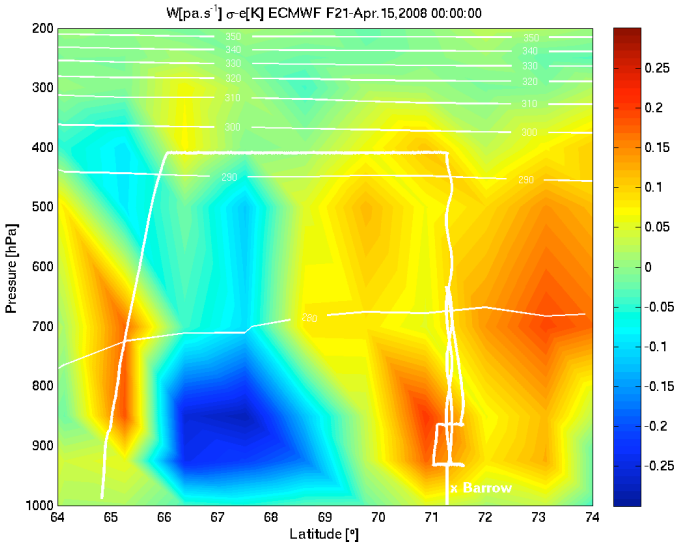

Figure 2.8 Vertical profile of flight F21 (in white full line) with equivalent potential temperature (K) and vertical velocity (Pa.s^{-1}) over Alaska at 00:00:00 UTC (15 April 2008).

2.3.3.2 N_{ic} - R_{ei} - RH_{Ice} - T_a relationships

Figure 2.9 shows the averaged particle size distribution measured by the 2DS in the size range 10-800 μm, the 2DC in the size range 150-800 μm and the 2DP probes for diameters greater than 800 μm, for both ice clouds. In both cases, the ice crystal size distributions show a bimodal shape between 10 (lower limit imposed) to 6500 μm with peaks at 10-20 μm (1.36 L^{-1}.μm^{-1}) and 120 μm (0.084 L^{-1}.μm^{-1}) for the F9 ice cloud and at 10 μm (0.21 L^{-1}.μm^{-1}) and 315-415 μm (0.005 L^{-1}.μm^{-1}) for the F21 ice cloud. The TIC-1/2A-F9 has a larger concentration of ice particles smaller than 300 μm by a factor of 10 and a lower concentration of ice particles larger than 300 μm by a factor of 1.5 when compared to the TIC-2B-F21. Similar concentrations for ice particles of diameter greater than 2000 μm are observed in both cases.

Figure 2.10 summarizes Figure 2.5a, b and d for both ice clouds F9 and F21. It shows the relative humidity with respect to ice as a function of air temperature measured in both ice clouds. Symbol size and color represent the number concentration and the effective radius of ice particles respectively from the combination 2. Data values (RH_{Ice}, N_{ic}, R_{ei}) are averaged for each 2.5 °C temperature interval. For both clouds, there is a

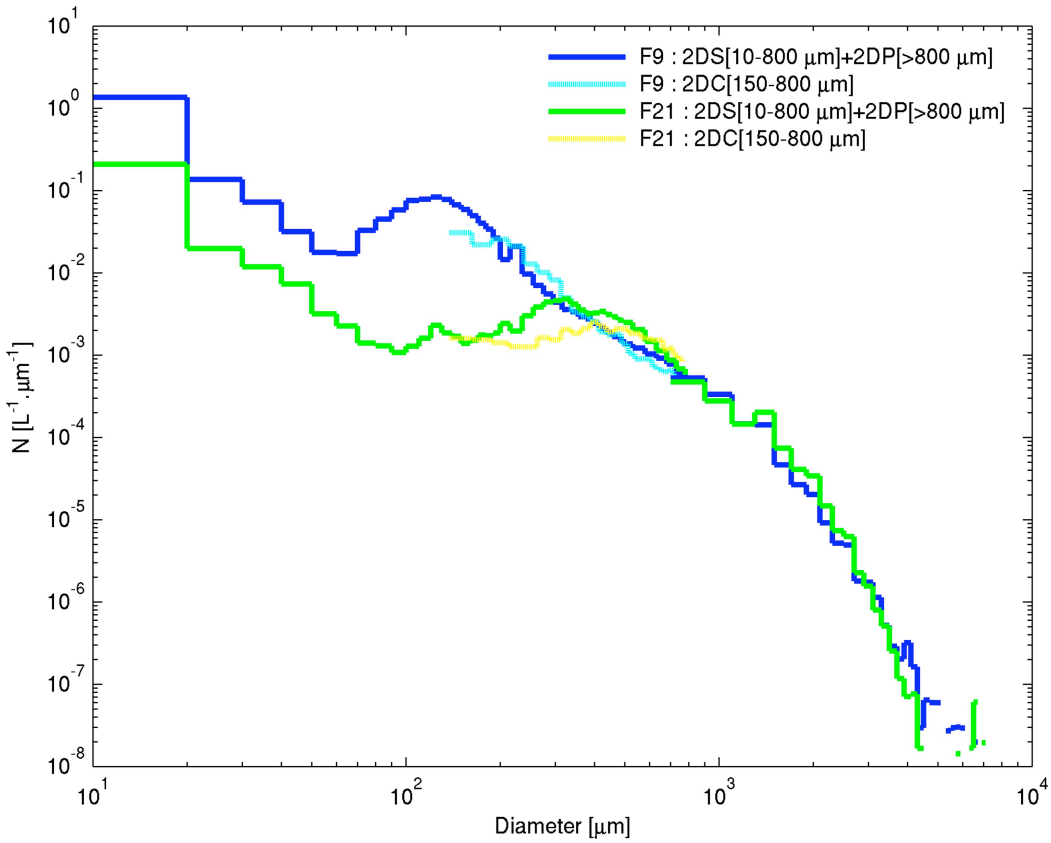

Figure 2.9 Averaged size distributions from 2DS, 2DC and 2DP probes for F9 (1 April 2008) in the time interval 23:13:43-23:32:10 UTC (in blue line) and for F21 (15 April 2008) in the time interval 00:55:26-01:14:58 UTC (in green line).

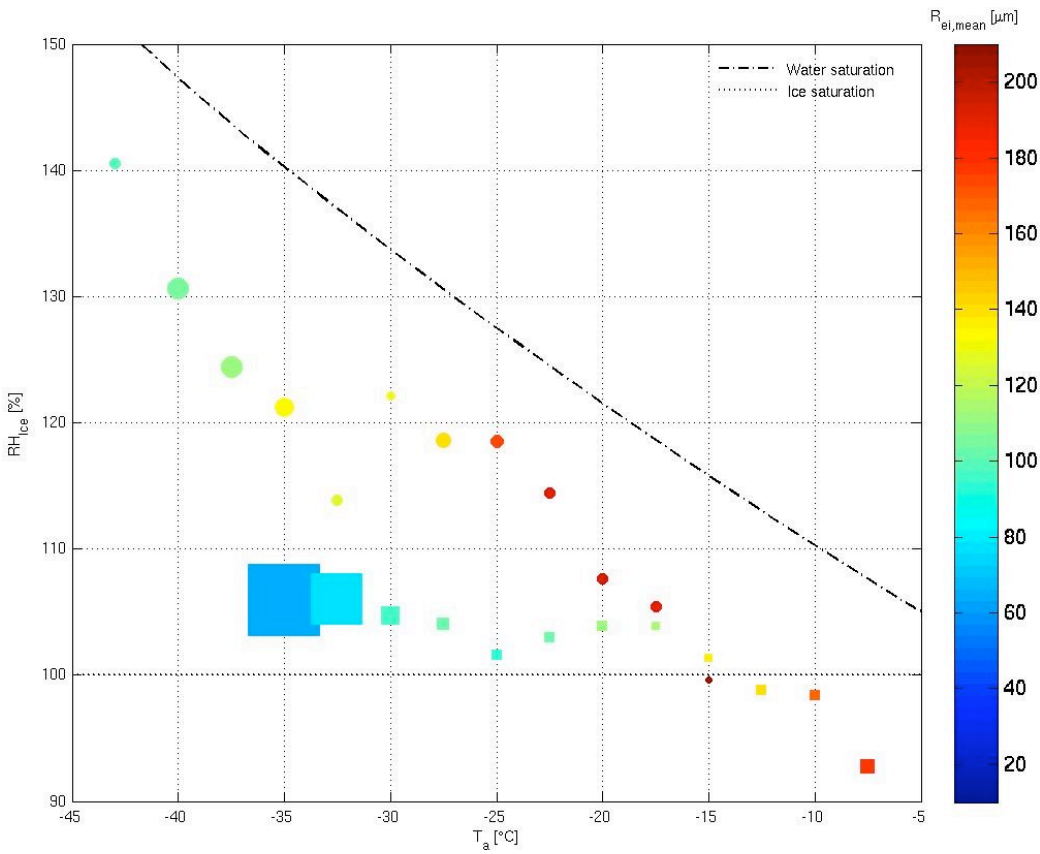

Figure 2.10 Relative humidity over ice as a function of temperature for ice clouds F9 and F21. Data are averaged over each 30-s and 2.5-°C interval. Symbol size represents $N_{ic,mean}$ and the bar color represents the $R_{ei,mean}$ of ice crystals from the combination 2 [2DS + 2DP].

clear tendency for RH_{Ice} to increase with increasing ice particle concentration and with decreasing air temperature and ice particle effective radius. This can be explained by the strength of the cooling rate, assoiated to synoptic scale conditions and the availability of ice nuclei. This will be further discussed in section 2.4.

The number concentration of ice particles in the TIC-2B-F21 ice cloud is smaller with diameters larger when compared to the TIC-1/2A-F9 ice cloud, while relative humidity over ice is larger in the TIC-2B-F21 ice cloud. Table 2.3 shows the three main parameters that define the main differences between the two types of ice clouds investigated: the averaged ice concentration, the averaged ice effective radius and the averaged relative

humidity over ice from instrument combination 2 (in black) and 1 (in gray) with the associated standard deviation. Differences between instrument combinations 1 and 2 are small when compared to differences between both cases for a given variable and a given instrument combination. Table 2.3 also shows that the differences of N_{ic}, RH_{Ice} and R_{ei} between both clouds increase as the temperature decreases. This suggests that differences should be the largest at cloud top where the temperature is the coldest.

2.3.3.3 Vertical variability of cloud properties

• April 1st, 2008 - F9 ice cloud

A low-level mixed-phase cloud extended from near the surface to ∼2 km height as shown by the temperature inversion (see Figure 2.11a). This mixed-phase cloud is characterized by a very large concentration greater than 10^3 $L^{-1}.\mu m^{-1}$ of liquid droplets smaller than 30 μm (Figure 2.11b). The reported maximum relative humidity over water (RH_{Water}) in the mixed-phase cloud below 2 km altitude is 92.3 % (never exceeds 100 %) at T_a = -5 °C (see 2.11). According to Lin and Hibbard (2003) the uncer-

Table 2.3 RH_{Ice}, N_{ic}, R_{ei} of ice clouds F9 and F21 averaged over each 2.5 °C period of air temperature, with their associated standard deviation. Values from the combination 2 (2DS+2DP) and from the combination 1 (2DS+2DC+2DP) are in black and gray respectively.

	F9			F21		
T_a (°C)	RH_{Ice} (%)	N_{ic} (L^{-1})	R_{ei} (μm)	RH_{Ice} (%)	N_{ic} (L^{-1})	R_{ei} (μm)
-42.5	-	-	-	140.5±4.5	3.2±4.2	99.8±13.1
					2.7±3.4	105.1±22.9
-40.0	-	-	-	130.7±5.3	10.7±5.7	104.3±9.3
					9.1±4.8	112.2±4.5
-37.5	-	-	-	124.4±3.1	10.6±2.3	111.8±6.3
					9.3±1.8	119.0±5.5
-35.0	105.9±2.3	180.7±72.7	65.1±7.6	121.3±8.8	7.9±2.4	132.8±14.1
		188.1±73.9	50.6±5.1		7.3±2.0	133.8±10.2
-32.5	106.0±0.8	100.2±62.5	76.6±6.0	113.9±6.5	2.8±1.7	127.2±15.1
		101.7±68.0	59.9±5.4		2.6±1.6	128.3±13.2
-30.0	104.7±2.3	12.4±14.3	97.1±14.5	122.1±2.7	2.1±1.2	130.1±8.2
		10.8±12.9	90.2±20.7		2.0±1.2	128.5±8.4
-27.5	104.0±2.2	4.9±1.7	102.9±6.4	118.6±1.4	4.9±1.0	140.7±12.6
		4.2±1.4	102.3±4.5		4.6±0.0	137.2±12.9
-25.0	101.6±3.2	4.2±3.1	91.3±6.1	118.6±1.0	3.8±1.0	173.1±15.1
		3.6±2.6	91.4±5.5		3.9±0.9	170.6±15.5

tainty should be around ± 6 %. Therefore RH_{Ice} values should have been biased quite a bit low in this case. Above this mixed-phase layer, the F9 deep ice cloud extends up to an altitude of 6.7 km. It is characterized by a relatively large number concentration of particles smaller than 200 μm in diameter at the top. Figure 2.11 shows that N_{ic} and derived bulk parameters IWC and σ_{ext} peak to values of 261.6 L^{-1}, 0.03 $g.m^{-3}$ and 1.28 km^{-1}, respectively. CPI images show that most of the particles were quasi-spheroidal, compact assemblages of plates, faceted polycrystals and irregulars becoming larger downward. Ice particles shape whithin F9 ice cloud seems to match with ice particles shape collecting in midlatitude winter storm to define both mass-diameter (Eq 2.2) and mass-area (Eq 2.1) relationships discussed above (Mitchell et al., 1990). However, the M90 database is composed of rimed habits, that the CPI probe does not seem to have measured whithin F9 ice cloud. Ice particles start to nucleate on ice nuclei when the relative humidity with respect to ice (RH_{Ice}) is larger than 100 %. RH_{Ice} exceeded 100 % above 4 km where the temperature is -16.0 °C and reaches 120.1 % at cloud top where the temperature is -35.7 °C. The layer between 4 km and cloud top is therefore the region where ice crystals nucleate. This can also be seen by the concentration of small particles, which increases from 4 km to the cloud top. This is consistent with the classical theory of ice nucleation by deposition in which the nucleation rate increases as the ice supersaturation increases (Pruppacher and Klett, 1997). The response of the RID probe throughout the F9 ice cloud indicates that there was no trace of supercooled water. This is consistent with the relatively low values of RH_{Ice} (Figure 2.10) closed to the ice saturation. These conditions suggest that the dominant nucleation process could be deposition ice nucleation.

Below 6 km, the ice crystal number concentration, ice water content and extinction coefficient rapidly decrease. They remain approximately constant afterward with values of ∼4 L^{-1}, ∼0.01 $g.m^{-3}$ and ∼0.24 km^{-1} respectively down to the mixed-phase cloud top. The ice crystal effective radius gradually increases from ∼50 μm at cloud top to ∼202 μm above the mixed-phase cloud top (Figure 2.12). The drop in ice crystal number concentration and ice water content below 6 km seems to be related to the entrainment of drier air between 4 and 6 km coming from the south that can be seen on satellite images (CALIPSO lidar and CloudSat radar) in Figure 2.13 at 71.3 °N latitude. The sublimation of ice particles in such an environment could contribute to decrease the ice water content substantially. Since the sublimation rate is inversely proportional to the ice crystal dimension, small ice crystals quickly sublimate thus contributing to increase the ice crystal effective radius. The sublimation can also affect the ice crystal

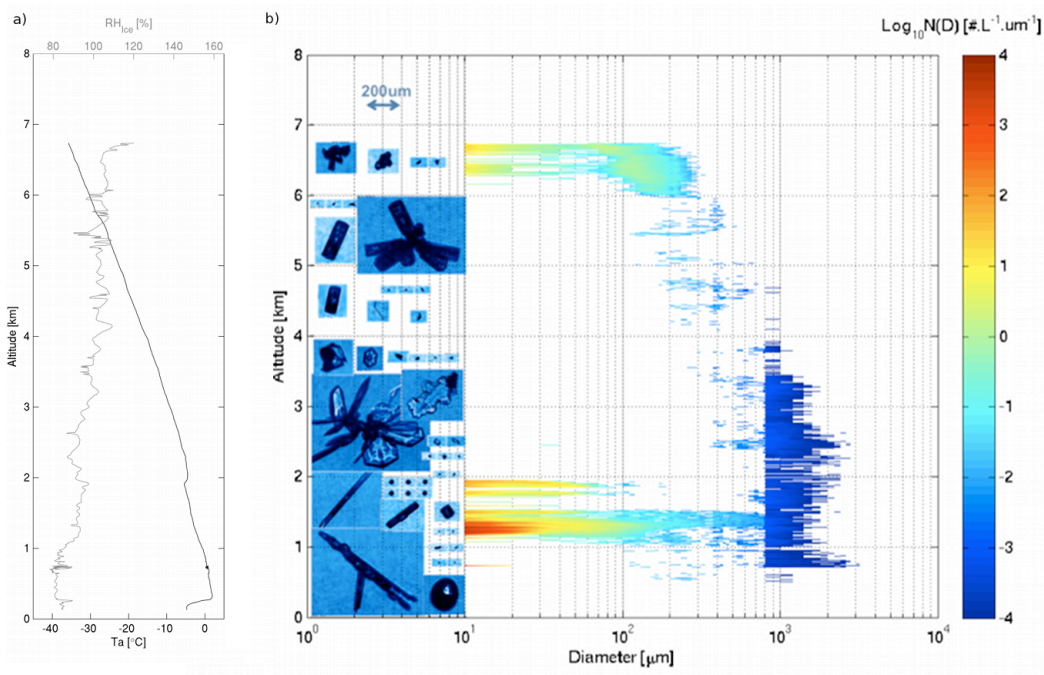

Figure 2.11 T_a and RH_{Ice} (a); N_{ic}(D) ($\text{Log}_{10}.\mu\text{m}^{-1}.\text{L}^{-1}$) as a function of ice crystal diameter (μm) from 2DS (10-800 μm) and 2DP (> 800 μm) (b) observed during F9. CPI images above show representative crystal shape and size to the corresponding altitude for the profile of F9 (1 April 2008) for the time interval 23:13:43-23:45:43 UTC.

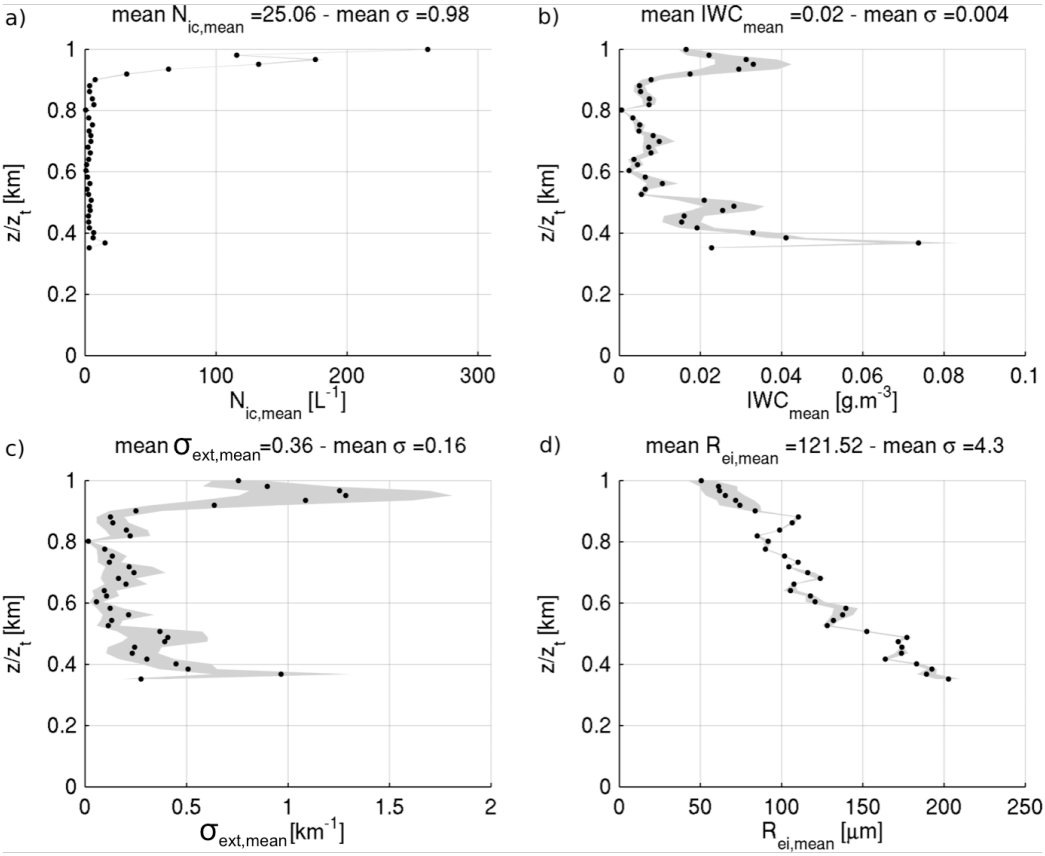

Figure 2.12 Averaged N_{ic} (a), IWC (b), σ_{ext} (c) and R_{ei} (d) between combinations (1) and (2) with their associated standard deviation as a function of height for the ice cloud F9 (1 April 2008) - Data are averaged over each 30 sec period.

habits and make the collision/aggregation processes more efficient. Korolev and Isaac (2004) presented images of sublimated particles resulting in smooth surface features, rounded corners and disappearing facets. These images were in perfect agreement with sublimating ice particles and aggregates (irregular particles) observed by the CPI probe in the cloud layer between 4 and 6 km (Figure 2.11b).

The F9 ice cloud was also sampled by CloudSat and CALIPSO satellites. The distance between the aircraft and satellite projected tracks was about ∼70 km over Barrow. The time lap between the aircraft track and the satellite overpass varied between ∼30 min at 23:13:43 UTC to ∼1h at 23:45:43 UTC. Observation time and location are different and therefore in-situ and satellite measurements are not sampling the same scene. Yet,

ice clouds observed by in-situ and satellites are part of the same low-pressure system and not too far from each other in time and space. The objective is to see whether the DARDAR synergistic radar-lidar products can differentiate the TIC-1/2A and TIC-2B and reproduce the vertical structure of these ice clouds and thus confirm the in-situ measurements. Figures 2.13 and 2.15 show key input parameters of CALIOP, CloudSat, and the DARDAR synergistic radar-lidar products derived from CloudSat and CALIPSO measurements. On April 1st 2008, radar and lidar measurements (see Figures 2.12a,b,c) indicate two ice cloud layers around the Barrow site (∼71.3 °N). A first layer extended from the surface to ∼6-7 km (hereafter CL1) and a second thin ice cloud (hereafter CL2) at ∼8.6 km (Figure 2.13a). No in-situ measurements were made in CL2, it is therefore ignored in this analysis. Few precipitating ice crystals are seen by the radar between the surface and 4 km. Figure 2.13a exhibits a merged mask created using both radar and lidar measurements following Delanoë and Hogan (2010). In this very cold region, most of the cloud was glaciated but one can notice supercooled layers at 5-7 km altitude at 71.2 °N latitude identified using the strong lidar return of CALIOP. This is not in agreement with the RID probe that shows no supercooled water in the F9 ice cloud. Given the fact that the air was subsaturated with respect to liquid water and that the RID probe has not detected any liquid water, it is very likely that the supercooled liquid layer is in fact a DARDAR algorithm artifact probably due to the noisy day-time lidar signal. According to the AWAC4 algorithm for the TICs classification of Grenier et al. (2009), this glaciated cloud is defined as a TIC-1/2A (Figure 2.14) and there is no liquid supercooled layer.

Figure 2.15 shows the vertical profiles of the DARDAR retrieved properties (IWC, σ_{ext}, and R_e) on different latitude slices around the Barrow site. The satellite observation is an instantaneous picture of the cloud and since the airborne sampling time is considerably longer, the cloud microstructure may have changed. It implies that we cannot directly compare profile-to-profile in-situ and satellites measurements (Delanoë et al., 2012). For this reason, different latitude slices are used to get a better representation of the flight in-situ measurements. In the upper first km of the cloud (i.e. between 0.7 to 1 (normalized height)), between 71.0 and 71.5 °N latitude, IWC ranges from 0.001 to 0.035 g.m^{-3}, σ_{ext} from 0.02 to 1.82 km^{-1} and R_e from 3.24 to 48.51 μm. This is in agreement with in-situ measurements for IWC and σ_{ext} in terms of order of magnitude in the upper part of the ice cloud. The ice effective radius is very sensitive to the assumption made on the mass-diameter relationship and its definition. Therefore, these results should be rather viewed as the relative differences between the two case studies

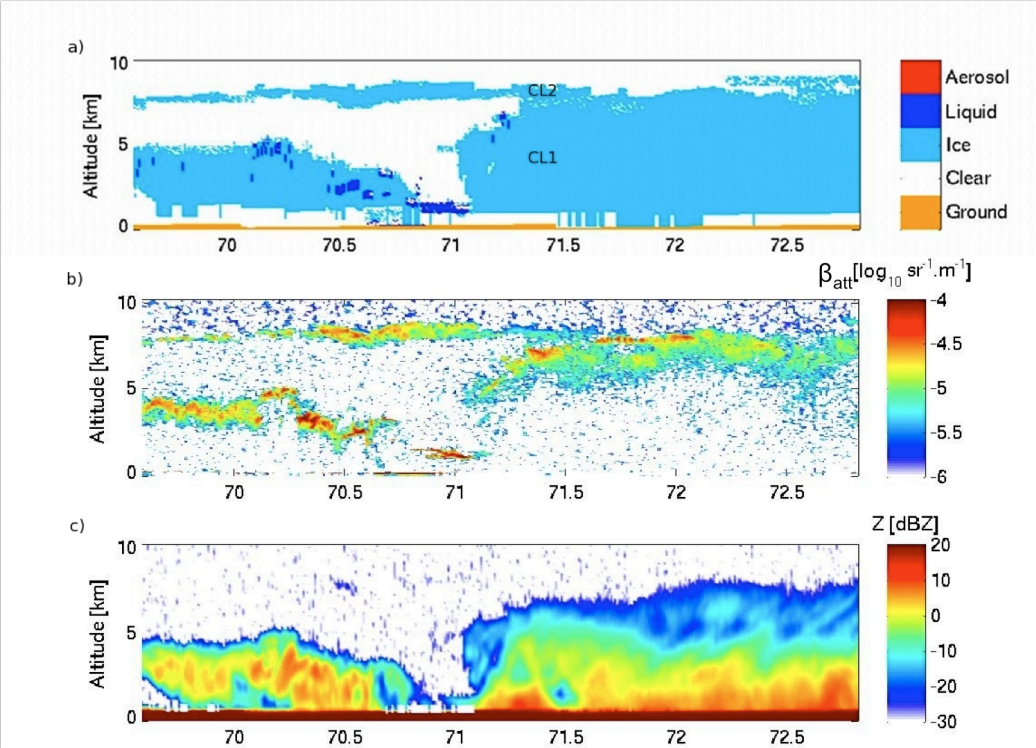

Figure 2.13 TIC1/2A observed on April 1st, 2008: Dardar Mask (a), total lidar attenuated backscatter (b) and radar reflectivity (c).

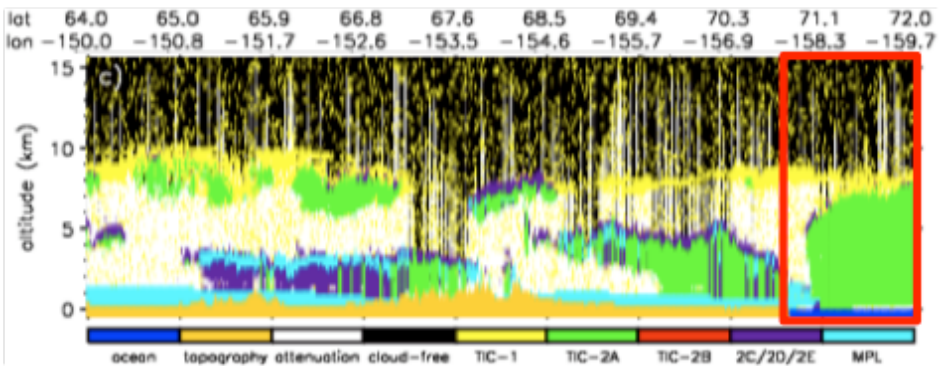

Figure 2.14 Classification TICs observed on April 1st, 2008 from the AWAC4 algorithm.

since absolute values of bulk quantities are highly uncertain.

• April 15th, 2008 - F21 ice cloud

Figure 2.16 shows a cloud layer extending from near the surface to a height of approximately 6.7 km. The ice crystal size distribution suggests that the deep cloud layer was mostly composed of large precipitating ice particles (mainly from 200 to 3000 μm diameter) with a very low number concentration (< 5 L^{-1} on average) (Figure 2.16b). Cloud air temperature varies from about -14.0 °C at the surface down to -42.2 °C at the cloud top. RH_{Ice} was relatively large and reached values up to 149.4 % at the top of the cloud (Figure 2.16a). At cloud top, there is a sharp increase of N_{ic}, IWC and R_{ei} up to 14.2 L^{-1}, 0.02 g.m^{-3} and 100 μm respectively within a relatively thin layer. The increase of these bulk quantities for the ice cloud observed on April 1st was slower. Then, a substantial drop in N_{ic}, IWC and σ_{ext} at ∼4.3 km (i.e. at ∼0.6 (normalized height)) is observed except for R_{ei}, which slightly decreases. Below this height, the IWC remains approximately constant while N_{ic} decreases to less than 5 L^{-1} and remains almost constant while R_{ei} increases from ∼120 μm to 211 μm (Figure 2.17). The drop of N_{ic} and IWC could be related either to the entrainment of drier air at this height or to the lack of 2DP data (seen on the Figure 2.16b at 4.3 km height).

The response of the RID probe throughout the F21 ice cloud indicates that trace amount of supercooled water was present and the CPI images do not show the presence of sublimating ice particles. This is consistent with the RH_{Ice} vertical profile, which shows values close to the saturation with respect to liquid water.

Figure 2.16b shows that pristine rosettes, columns and bullet rosettes are the dominant crystal habit through the cloud. Bailey and Hallett (2004; 2009) found that ≪pristine rosettes≫ (i.e. rosette shapes that are not mixed habit and are without plate like and side-plane features) only form at temperatures below -40 °C and that columns and bullet rosettes are frequent at colder temperatures (T_a < -40 °C) with ice supersaturation around 25 %. The ice cloud F21 is associated to a cold decaying low-pressure system, which is characterized by a weak downward vertical motion (Figure 2.8). In this environment, air parcels can stay long periods of time in quasi-equilibrium between deposition and production of ice supersaturation due to a slow cooling of the air mass by infrared radiation. In these conditions of very low temperature and high ice supersaturation, ice crystals may have time to reach an equilibrium state for the development of normal

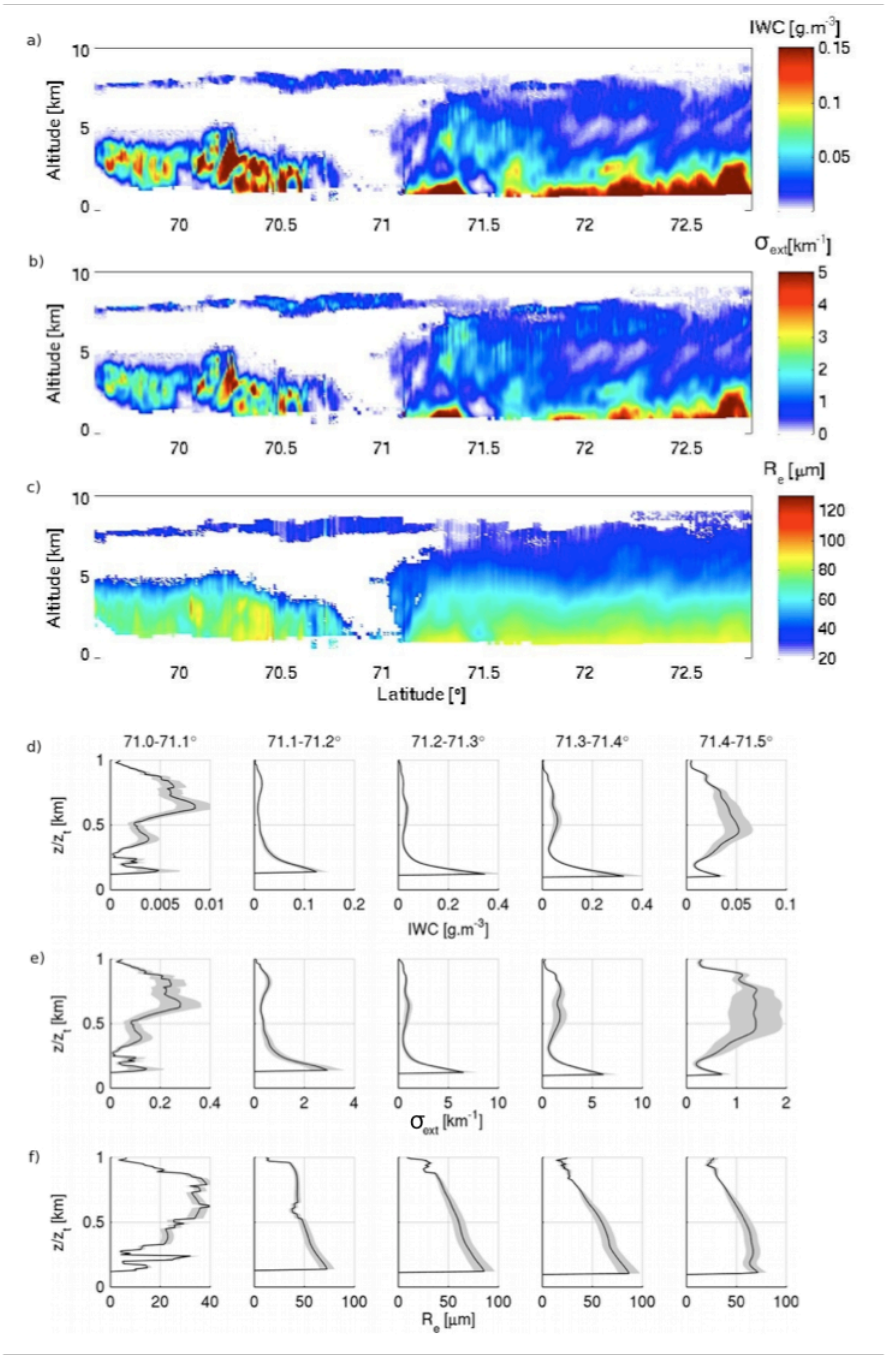

Figure 2.15 Latitude-Height representation of the synergistic Cloudsat radar and CALIPSO lidar retrieval of ice cloud properties: ice water content (a), visible extinction coefficient (b) and effective radius (c) for the April 1st, 2008 case.

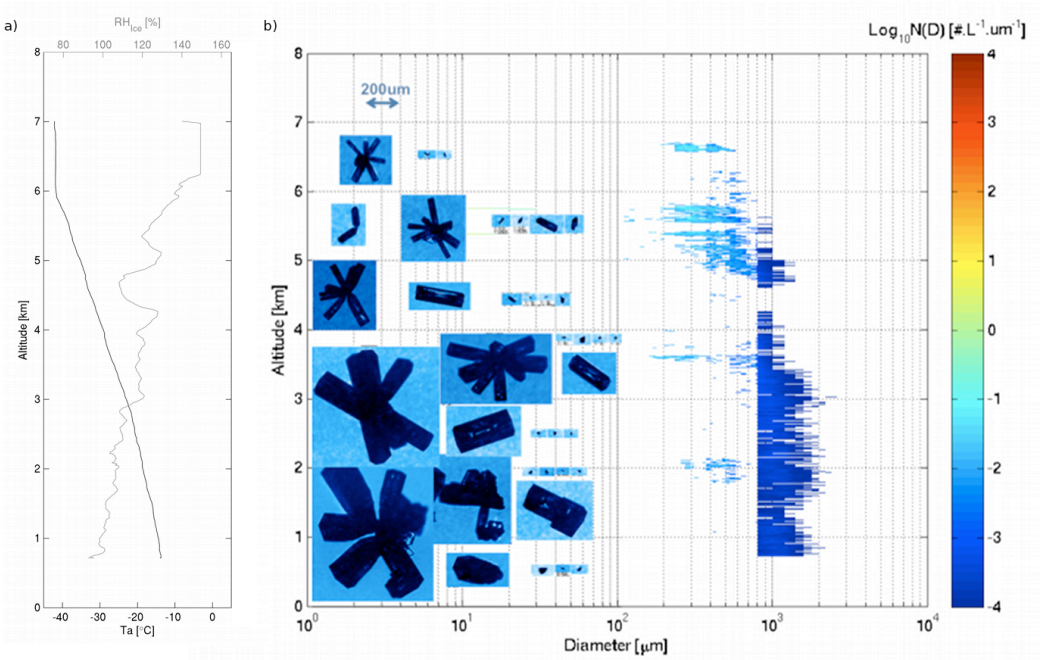

Figure 2.16 T_a and RH_{Ice} (a); N_{ic}(D) ($\text{Log}_{10}.\mu\text{m}^{-1}.\text{L}^{-1}$) as a function of ice crystal diameter (μm) from 2DS (10-800 μm) and 2DP (> 800 μm) (b) observed during F21. CPI images above show representative crystal shape and size to the corresponding altitude for the profile of F21 (15 April 2008) for the time interval 00:55:26-01:17:24 UTC.

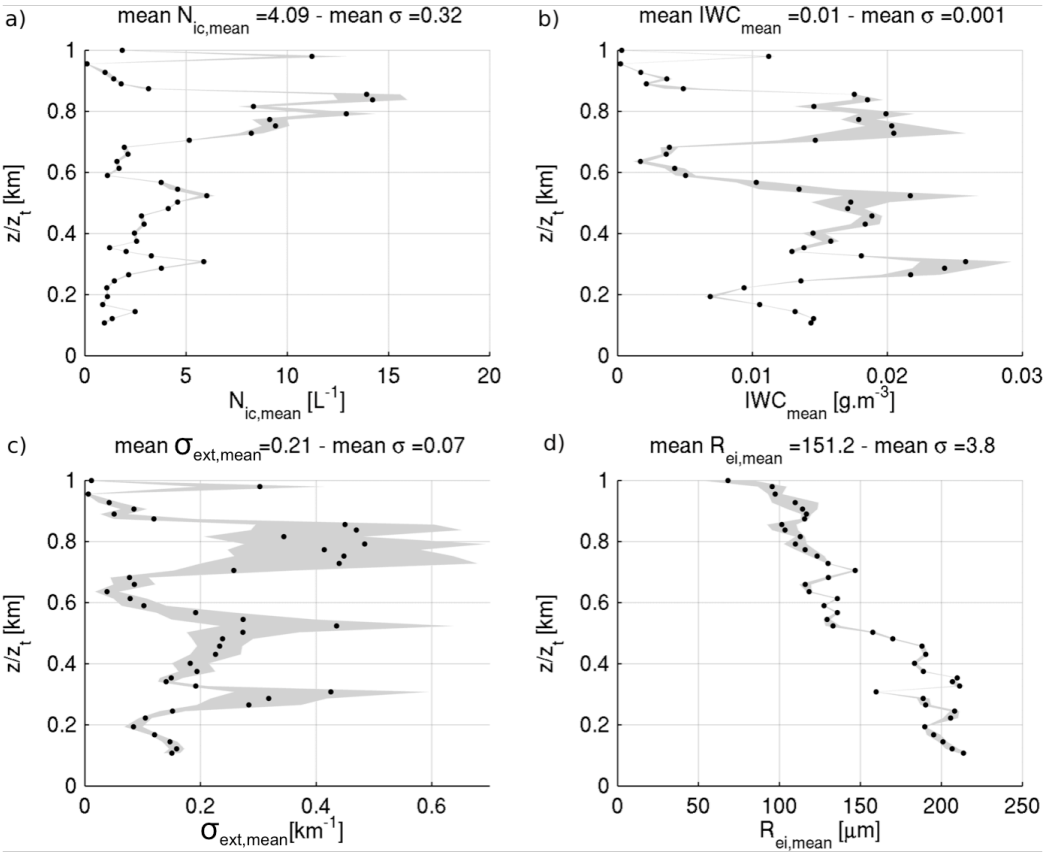

Figure 2.17 Averaged N_{ic} (a), IWC (b), σ_{ext} (c) and R_{ei} (d) between combinations (1) and (2) with their associated standard deviation as a function of height for the ice cloud F21 (15 April 2008) - Data are averaged over each 30 sec period.

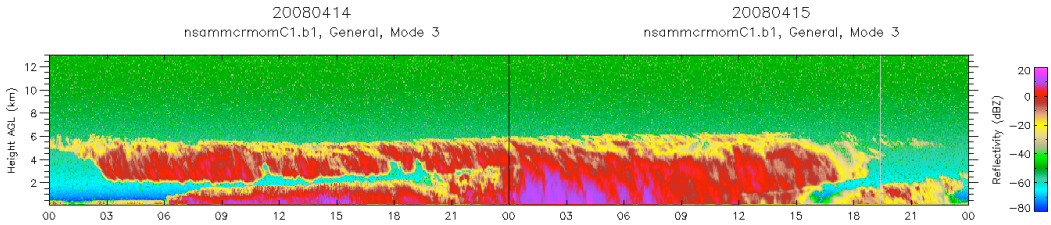

Figure 2.18 Extended deep ice cloud between 03:00:00 UTC the April 14th, 2008 to 15:00:00 UTC the April 15th, 2008, shown by the MMCR Radar based at Barrow.

hexagonal and rectangular faces by depositional freezing as shown by the images of perfect forms of rosette bullets seen by the CPI probe.

CloudSat and CALIPSO did not sample the F21 ice cloud on April 15th 2008. However, there was an overpass about 3 h before at about 170 km to the east of the sampling profile (Figure 2.7). The synoptic patterns were very similar on the 14th and the 15th with the presence of the same decaying low-pressure system moving slowly from the Arctic ocean with an easterly flow, i.e. towards the Barrow site. The synoptic pattern and thermodynamic structure of the atmosphere (Figure 2.7) are very similar to the time of the F21 flight. Morever, the Millimeter Cloud Radar based at Barrow shows the presence of the extended deep ice cloud between 03:00:00 UTC the April 14th, 2008 to 15:00:00 UTC the April 15th, 2008 (Figure 2.18). It is therefore reasonable to assume that the cloud microstructure was not very different than 3 h later.

At the time of the satellite overpass, radar and lidar measurements suggest the superposition of two layers of air with the presence of a cloud-free area identified by CALIPSO from 70 °N to 72 °N latitudes (Figure 2.19). Both cloud layers extended from the surface up to ∼5.2 and ∼5.7 km at 71.0°N and 71.5 °N respectively. Larger values of radar reflectivity (Figure 2.19c) and lidar depolarization ratio (Figure not shown) support the presence of precipitating non-spherical ice crystals in the deep glaciated cloud, consistent with the CPI images. Figure 2.19a shows that most of the cloud was glaciated. However, several traces of supercooled water were dispersed through the cloud. This is in agreement with the response of the RID probe indicating that supercooled water was present. Further, it is noted that traces of liquid water observed in this cloud are not likely to be cloud water droplets but rather haze droplets. Some traces of aerosol are also visible just above the cloud at 69.5 to 70 °N latitude at 4 km height. The AWAC4 algorithm does not identify in detail the type of the observed TIC (Figure 2.20). We see

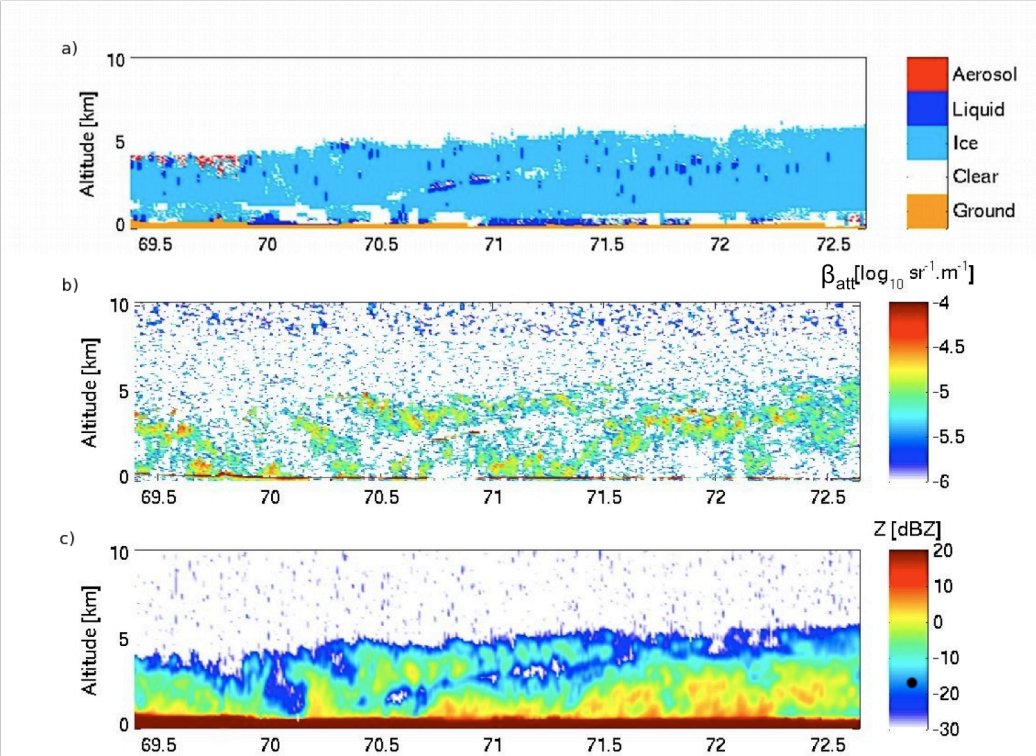

Figure 2.19 TIC2 observed on April 14th, 2008: Dardar Mask (a), total lidar attenuated backscatter (b) and Radar reflectivity (d).

a TIC-2D (Table 1.1) above a TIC-2A. This means that the thickness of the upper layer of the cloud, seen by the lidar and not by the radar, is too ambiguous to be classified as TIC-1. The AWAC4 algorithm performance for identifying small crystal size mode ice clouds (TIC-1) is poor in presence of daylight, because of the important solar contamination in the lidar wavelengths. The AWAC4 algorithm is optimal in winter above the Arctic with the investigation of night-time orbital segments. This is an example of the limitations of the AWAC4 algorithm in the classification of TIC1/2A versus TIC-2B.

Figure 2.21 shows the vertical profiles of retrieved properties on different longitude slices around the Barrow site. In the first km, at the top of the cloud between 0.7 to 1 (normalized height), IWC varies from 0.001 to 0.021 g.m^{-3}, σ_{ext} from 0.061 to 0.65 km^{-1} and R_e from 15.90 to 53.83 μm. These results agree well with in-situ measurements (Figure 2.12) for IWC and σ_{ext} at cloud top in terms of order of magnitude.

Table 2.4 shows the averaged values of β_{att}, Z and R_e retrieved from the Varcloud

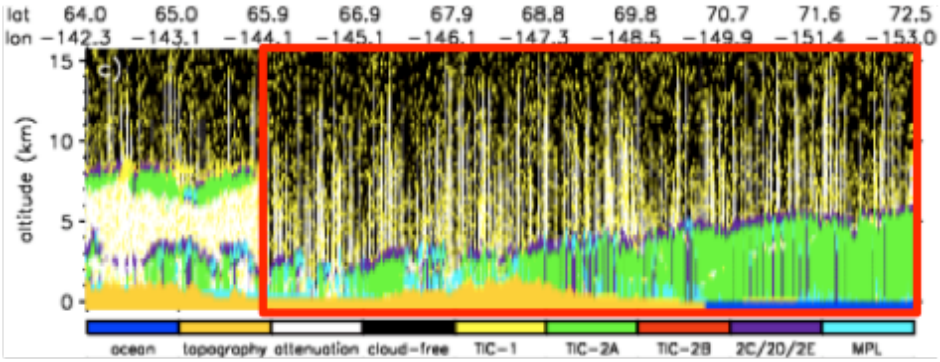

Figure 2.20 Classification TICs observed on April 14th, 2008 from the AWAC4 algorithm.

algorithm as a function of the normalized altitude between the latitude 71.0-71.5 °N, for the F9 and F21 ice clouds. The averaged R_e of the TIC-2B-F21 ice cloud is greater by a factor of ∼1.3 (compared to ∼1.7 for airborne data) on the first 2 km at the top when compared to the averaged R_e of the TIC-1/2A-F9 ice cloud. This results in a R_e vertical profile steeper for the TIC-2B-F21 ice cloud, i.e. an explosive growth of the ice crystals by water vapor diffusion. In the TIC-1/2A-F9 case, the ice crystal growth is more progressive and slow.

These two case studies (TIC-1/2A-F9 and TIC-2B-F21) have similar cloud top height,

Table 2.4 β_{att}, Z, R_e from VarCloud Algorithm of ice clouds F9 and F21 averaged between 71.0 to 71.5 °NN with their associated standard deviation, according to the normalized altitude.

z/z_t	F9 z_t=7600 m			F21 z_t=5940 m		
	β_{att} $\log_{10}sr^{-1}.m^{-1}$	Z dBz	R_e μm	β_{att} $\log_{10}sr^{-1}.m^{-1}$	Z dBz	R_e μm
[1-0.9]	-5.31±0.20	-30.0±2.3	27.6±1.2	-5.69±0.11	-30.0±2.0	36.8±1.0
[0.9-0.8]	-5.25±0.09	-22.7±1.9	33.6±2.5	-5.59±0.10	-21.6±3.5	41.7±2.4
[0.8-0.7]	-5.45±0.06	-16.7±2.0	40.7±2.2	-5.31±0.09	-12.8±1.8	49.4±2.0
[0.7-0.6]	-5.45±0.05	-12.2±1.2	46.6±1.9	-5.46±0.14	-14.0±2.3	49.4±1.8
[0.6-0.5]	-5.62±0.10	-9.8±0.3	52.3±1.9	-5.60±0.06	-20.2±1.1	45.5±0.5
[0.5-0.4]	-5.71±0.08	-9.2±0.1	57.2±1.1	-5.55±0.08	-15.7±2.5	48.8±2.6
[0.4-0.3]	-5.77±0.07	-8.5±0.5	60.8±1.4	-5.49±0.05	-10.1±1.6	57.0±2.9
[0.3-0.2]	-5.80±0.08	-7.7±0.8	65.9±2.2	-5.36±0.11	-4.4±1.9	66.4±3.0
[0.2-0.1]	-5.65±0.19	-1.7±3.2	71.8±6.0	-5.17±0.06	0.5±1.8	73.5±1.6
[0.1-0]	-5.78±0.07	20.7±13.7	0.0±0.0	-5.07±0.40	23.3±13.6	79.3±3.1

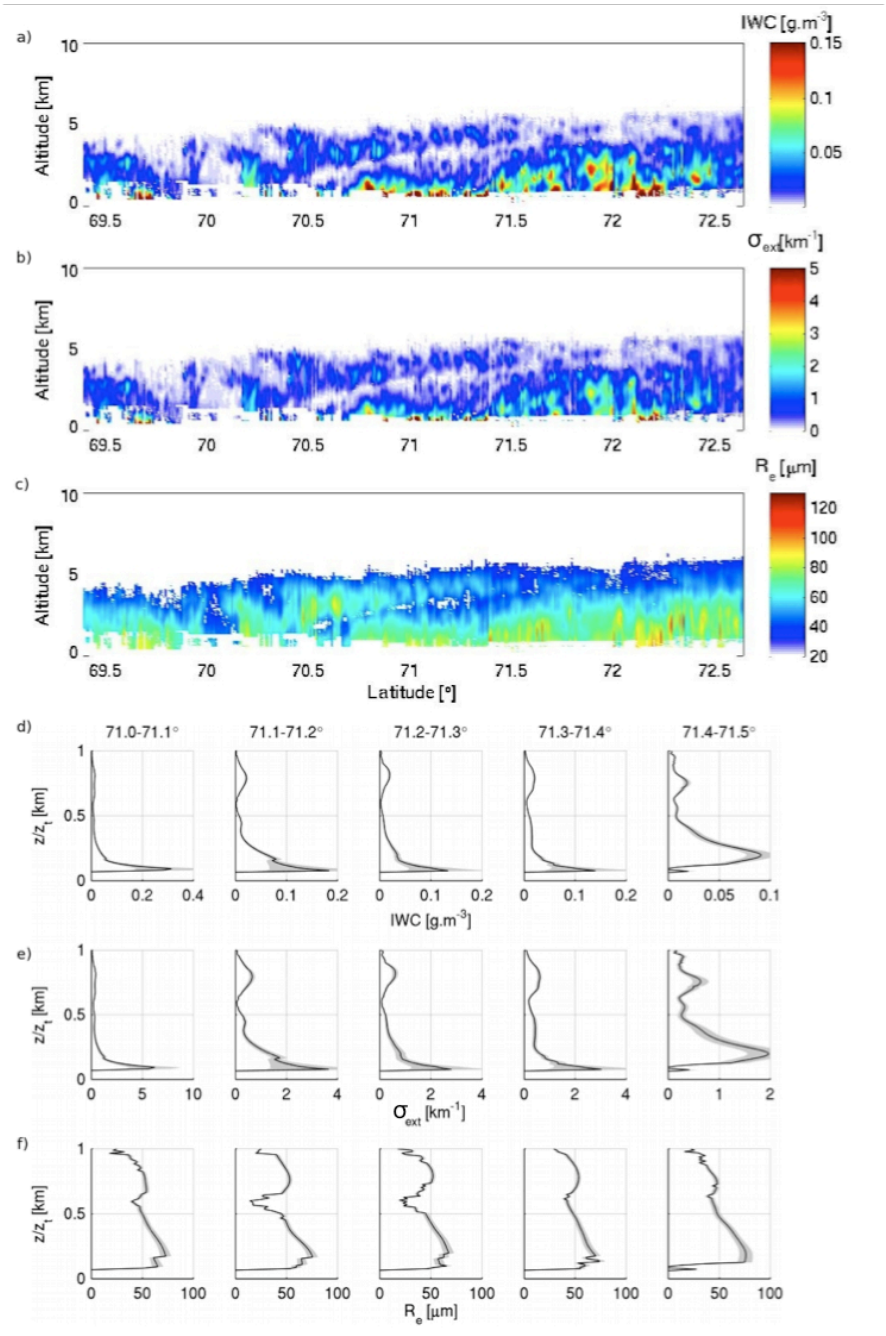

Figure 2.21 Latitude-Height representation of the synergistic Cloudsat radar and CALIPSO lidar retrieval of ice cloud properties: ice water content (a), visible extinction coefficient (b) and effective radius (c) for the April 14th, 2008 case.

optical depth, temperature and ice water content. Yet, the vertical profile of the number concentration and size of ice crystals are very different. The relative humidity with respect to ice is also higher in the TIC-2B-F21 ice cloud almost reaching the saturation with respect to liquid water. Furthermore, traces of liquid water were also observed in the TIC-2B-F21 ice cloud. These differences occur mainly in the upper part of both clouds where ice crystals nucleate.

The IN concentration is possibly determinant for these clouds. Indeed, a large concentration of IN allows to increase the N_{ic} and lower the ice supersaturation. Unfortunately, the CFDC was not functional during the flight F9. It is therefore not possible to make a direct comparison between the flights F9 and F21. However, other TIC-1/2A and TIC-2B selected cases (see Table 2.2) provide some information on the IN concentration: flights 20, 21 (TICs-2B) and 29 (TIC-1/2A). Figure 2.22 shows the average IN concentration from the CFDC probe, measured in range of -11 to -42 °C T_a and 0-40 % RH_{Ice}, throughout the flights F20, F21 and F29. No CFDC IN concentration data were available at the time interval of the F29 ice cloud defined in Table 2.2. However, we assume that the average IN concentration measured over the entire flight from Barrow to Fairbanks is representative of the ice cloud air masses identified in Table 2.2. We compared the average IN concentration inside TIC-2B F20 and F21 (selected ice clouds in Table 2.2) to the average IN concentration of the entire flights F20 and F21 and we found similar values in range of 1 to 5 L^{-1}. Obviously IN concentration between two locations spaced more than 800 km could differ a lot, as IN concentration measured nearer-surface compared to the higher elevations. These results should be considered preliminary estimates. Results shows that the IN concentration is larger for flight F29 (2 order of magnitude) when compared to flights F20 and F21. This is consistent with the large (small) ice crystal concentration of flights F29 (F20 and F21). These results suggest that the IN concentration was larger in the TIC-1/2A-F9 ice cloud when compared to the TIC-2B-F21 ice cloud.

In the TIC-1/2A-F9 ice cloud, a relatively large IN concentration allows for the nucleation of ice crystals by water vapor deposition at lower saturation with respect to ice, i.e. where ice nucleation is efficient. At cloud top, there is no input of precipitating ice crystals. Also, the air mass cools radiatively during the slow TIC life cycle. Therefore, the relative humidity with respect to ice cannot decrease without the contribution of ice nucleation by deposition. The relatively large ice crystal concentration combined to the moderate ice supersaturation lead to the growth of ice crystals by water vapor deposition and aggregation at a relatively small rate. This is shown by the gradual

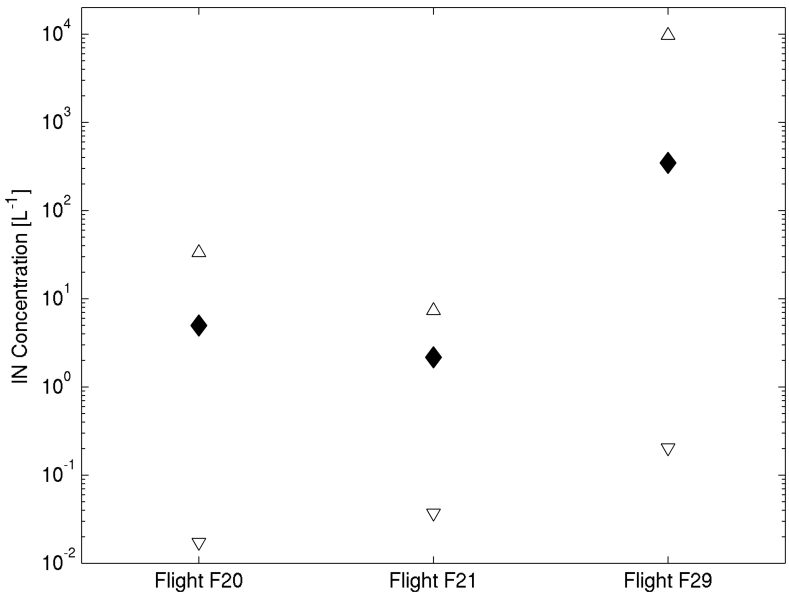

Figure 2.22 Average ice nuclei concentrations from the CFDC probe measured on the ambient inlet during clear-air conditions at water saturation between -10 % to +10 % (solid diamonds) with upper limit (open triangle) and lower limit (open inverse triangle).

increase of the ice crystal effective radius from the cloud top to lower cloud levels.

In the case of the TIC-2B-F21 case, the IN concentration is very low. Consequently, the ice crystal concentration remains low allowing for the ice supersaturation to increase up to values near saturation with respect to liquid water. Traces of liquid water observed in this cloud are not likely to be cloud water droplets since the air is slightly undersaturated with respect to liquid water. They could be rather produced by haze droplets, which can be detected by the spaceborne CALIPSO lidar (Van Diedenhoven B. et al., 2011). Close to liquid water saturation, soluble aerosols can grow to sizes relatively large. Consequently, these haze droplets will become diluted enough and freeze by either immersion or condensation-freezing, which typically occur at higher ice supersaturation than the onset ice supersaturation for deposition nucleation reported in this case (e.g. Eastwood et al., 2009). Low concentration of IN in the deposition mode combined to the high ice supersaturated air lead to an explosive growth of ice crystals by water vapor diffusion. This can be seen by the sharp R_{ei} gradient at the top of the TIC-2B-F21 ice cloud. As a result, the F21 cloud is composed essentially of a relatively low concentration of precipitating ice crystals whereas the TIC-1/2A-F9 ice cloud is composed by a top layer

of small ice crystals in relatively large number concentrations, which gradually grow to precipitating sizes by water vapor diffusion and collision processes.

2.4 Discussion

Recent laboratory experiments have shown that good ice nuclei such as kaolinite particles can be «de-activated» when they are coated with various chemical species such as ammonium sulphate, ammonium bi-sulphate, sulfuric acid and some organics (e.g. Eastwood et al., 2009; Chernoff et al., 2010). These experiments have shown that the onset ice supersaturation at which ice nucleation occurs (in the immersion mode) is substantially increased close to the liquid saturation point when the kaolinite particles are coated with sulfuric acid compared to uncoated particles (in the deposition mode). According to Sullivan et al. (2010), the IN de-activation effect of sulphuric acid on dust particle is irreversible and still active once the acid has been neutralized with ammonia. Grenier et al. (2009) hypothesized that clouds composed of a small concentration of large precipitating ice crystals (TIC-2B) observed with Cloudsat and CALIPSO over the Arctic during winter could also be linked to acid coating on IN concentration in polluted air masses. Modeling studies using box models, single-column models and regional climate models evaluating the impact of the IN de-activation effect by acid coating on the cloud microstructure, precipitation and radiation have also been performed over the last 10 years (Girard et al., 2001; 2005; 2012; Girard and Stefanof, 2007). All these modeling investigations have shown that acid coating on IN leads to fewer but larger ice crystals in ice clouds at cold temperatures. These previous modeling studies have also shown that the ice supersaturation is larger in TIC-2B clouds when compared to TIC-1/2A clouds. Therefore, satellite, in-situ and laboratory observations, and modeling studies concur to support the hypothesis that these clouds (TIC-2B) are linked to aerosols composition, possibly with a highly acidic coating dominant in the Arctic during the cold season (Sirois and Barry et al., 1999) whereas TIC-1/2A clouds would form in a more pristine environment (Grenier et al., 2009). Results presented in this paper also suggest that TIC-2B form in air masses containing relatively low IN concentrations whereas TIC-1/2A form in air masses with larger IN concentration. Because of the small number of cases investigated and the limited availability of the CFDC during ISDAC, the link between the IN concentration and the type of TIC will need to be further investigated in future campaigns.

A recent study on the large-scale transport of aerosols to Alaska during April 2008

was performed by Atkinson et al. (2011). Results were based on synoptic meteorological analysis, air mass back trajectory studies using the Lagrangian Particle Dispersion Model (FLEXPART) and on the lidar, surface lidar and balloon-borne aerosol measurements at the Fairbanks site. Results show that Alaska experienced several major aerosol-loading events in April 2008. The first few days of April (April 1st to midday April 5th, 2008) were dominated by pristine clear conditions with a very low aerosol concentration. This is in agreement with the PCASP measurements that were performed during flights F9, F11 and F12 (see Table 2.2). Satellite observations have also shown pristine conditions on a wider scale south of Fairbanks. This appears to result from the presence of a low-pressure system located to the west of Alaska leading to an atmospheric flow into the Alaska Interior from the western North Pacific ocean. Atkinson et al. (2011) suggest a combination of several factors and processes that contributed to greatly reduce the aerosol loading such as the lost of aerosols during transport by wet deposition/precipitation processes associated to a long residence time over the Pacific ocean and forced topographic ascent. The second week of April (midday April 5th to April 17th, 2008) was dominated by Asian dust with some smoke probably resulting from a flow from northern China and southern-east Siberia, maintained by the presence of an anticyclone in the central North Pacific. As opposed to the pristine period, the air mass quickly crosses the ocean and has not passed over the Alaska Range. Smoke comes from biomass burning in the Kazakhstan and southern Siberia regions (Warneke et al., 2009). Moreover dust aerosols come possibly from the Gobi (March 28th, 2008) and Takla Makan (April 2nd, 2008) dust-raising events, which would have reached the Alaska Interior given the favorable large-scale circulation patterns. However, Burton et al. (2012) who made several flights in the Faribanks-Barrow area during the same period of spring during ARCTAS (Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites) reported a small occurrence of dust but large occurrence of haze and smoke.

These studies suggest that the TIC-1/2A-F9 (April 1st, 2008) formed in a pristine environment whereas the TIC-2B-F21 (April 15th, 2008) appears to have been formed in a more polluted environment composed of Asian dust with smoke. This is also supported by satellite observations of SO2 concentration over the NSA from the Ozone Monitoring Instrument (OMI) (see Figure 2.23) showing that the SO2 concentration, precursor of sulfuric acid, was higher in April 15th, 2008 than in April 1st, 2008 over Alaska. These observations confirm the Atkinson et al. (2011) results and indicate that the aerosols on April 15th was likely to be moderately to highly acidic. It is likely that aerosols have

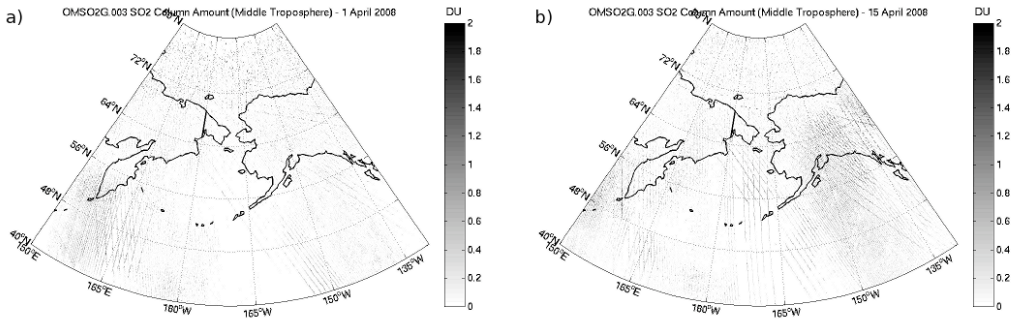

Figure 2.23 Satellite measurements of SO_2 total columns by OMI on 1 April 2008 (a) and 15 April 2008 (b).

been acidified during their transport by the large amount of SO_2. Yet, a direct link between acidic aerosols and TIC-2B clouds remains to be established.

2.5 Summary

The objectives of this study were to characterize the microphysical and thermodynamical properties of TIC-1/2A and TIC-2B clouds using airborne measurements taken during the ISDAC campaign conducted over the NSA during April 2008. A statistical study was performed on a set of ISDAC cloud profiles, associated to different types of ice clouds (TICs). This was done in order to determine the relationships between RH_{Ice}, T_a, N_{ic}, IWC, R_{ei} for each type of ice cloud (TIC-1/2A and TIC-2B). From this study, two types of ice clouds have been distinguished. The first type (TIC-1/2A) is composed by a large concentration of small ice crystals whereas the second type (TIC-2B) is composed of a smaller concentration of larger and precipitating ice crystals. The relative humidity with respect to ice is larger in the second type of ice cloud when compared to the first type. Two ice clouds representing each type were investigated in greater details. They are the ice cloud cases observed on April 1st 2008 (TIC-1/2A-F9) and on April 15th 2008 (TIC-2B-F21). Both have similar vertical extent, temperature and ice water content. Results show that most of the differences between the two clouds are located near cloud top where the nucleation of ice crystals occurs. In the TIC-2B-F21 case, few ice crystals nucleate at high ice supersaturation and grow very rapidly to precipitating sizes. In the TIC-1/2A cloud, a larger number of ice crystals nucleate and they grow at a slower pace by water vapor diffusion and aggregation to precipitating sizes.

A possible explanation for these differences between both cloud types is the availability of active IN at relatively low ice supersaturation. Recent modeling and observational studies support the SIFI hypothesis, that is acidic coating on IN could explain the formation of TIC-2B at the expense of TIC-1/2A.

Further investigations will be needed to confirm a link between TIC-2B clouds and acidic aerosols. The Ice Forming Nuclei and acidic information of aerosols are needed to make a better assessment on IN nucleation capability. Volcanic emissions provide a source of sulfate throughout the troposphere that is not neutralized by natural ammonia emission, thus keeping a higher degree of acidity. Volcanoes are therefore interesting to study the link between highly acidic aerosols and TIC-2B. In April 2008, sustained eruptive and non-eruptive (continuous degassing) activity was recorded at Karymsky and Shiveluck volcanoes in Kamchatka Peninsula; Cleveland and Veniaminof volcanoes in the Aleutian Islands, i.e. regions that several air masses cross before reaching the Alaska Interior. Future work will be needed to link air masses influenced by these active volcanoes and the ice cloud formation during ISDAC.

2.6 Conclusion et Transition: Analyse des différentes hypothèses menant à la formation d'un TIC-2B

Dans le premier article, nous avons analysé les propriétés microphysiques et thermodynamiques d'une sélection de nuages de glace (TICs) observés lors de la campagne de mesures ISDAC en avril 2008 au-dessus de l'Alaska. Un algorithme simple, basé sur la mesure des sondes RID, 2DS et du thermomètre à flux-inversé, nous a permis d'identifier la phase glace sur l'ensemble des vols ISDAC. Sept profils verticaux de TICs ont été sélectionnés avec des T_a atteignant des valeurs inférieures à -30±0.5 °C et un IWC moyen inférieur à 0.03 g.m^{-3}. Dans la mesure où R_{ei} et N_{ic} dépendent de IWC, en comparant les nuages avec des IWC similaires, ceci nous permettait d'exclure les différences liées à IWC pour expliquer les différences de R_{ei} et N_{ic} entre les nuages. La variabilité des paramètres de N_{ic} et R_{ei} en fonction de RH_{Ice} et T_a pour chacun des nuages de glace sélectionnés a permis de distinguer deux classes dinstinctes de TICs, correspondantes aux caractéristiques brutes de celles identifiées à partir des données lidar (CALIPSO) et radar (CloudSat) suivant l'algorithme AWAC4 de Grenier et al. (2009; 2010). Les résultats in-situ donnent *la preuve observationnelle que les TIC-2B sont caractérisés par une plus faible concentration (< 10 L^{-1}) de plus gros (> 110 μm) cristaux de glace comparés aux TIC-1/2A.* Un autre résultat intéressant est la mesure de

l'RH_{Ice} qui montre *une sursaturation par rapport à la glace (S_{Ice}) au sein des TIC-2B plus élevée (> 0.15-0.20), proche de la saturation par rapport à l'eau liquide, comparé aux TIC-1/2A, pour des températures comprises entre -30.0 et -40.0 °C, c'est à dire aux températures pour lesquelles l'effet SIFI est actif.*

Dans ce travail, une analyse approfondie a été réalisée sur les cas du 1er avril (TIC-1/2A-F9) associé à un front chaud, et du 15 avril 2008 (TIC-2B-F21) associé à un système de basse-pression froide en décomposition, au-dessus de Barrow (Alaska). L'analyse synoptique montre des mouvements verticaux au sein des nuages relativement faibles. L'analyse des propriétés nuageuses entre le TIC-1/2A-F9 et le TIC-2B-F21 montre que *les différences dans la microstructure des nuages sont confinées dans la partie supérieure du nuage, là où la nucléation de la glace a lieu.* Dans le cas du nuage de glace TIC-1/2A-F9, l'absence de traces d'eau liquide, la valeur relativement faible de S_{Ice}, combinées à une N_{ic} relativement élevée, laissent suggérer que le processus dominant de formation des cristaux de glace est la nucléation par déposition. Les processus d'accroissement des cristaux de glace sont la déposition et l'agrégation à *un taux relativement faible, comme l'illustre l'augmentation progressive de R_{ei} entre le sommet et les niveaux inférieurs du nuage.* Dans le cas du nuage de glace TIC-2B-F21, la présence de traces d'eau liquide avec une valeur de S_{Ice} proche de la saturation par rapport à l'eau liquide laissent suggérer que le processus dominant de formation de ces cristaux de glace est le gel par immersion et/ou condensation-gel.

L'évolution temporelle de S_{Ice} dépend de deux termes; le taux de production (P) et le taux de condensation (C) selon la formule suivante: dS_{Ice}/dt=P-C. P est lié à la vitesse verticale de la parcelle d'air (w). C est fonction de N_{ic} et du taux de croissance d'un cristal par diffusion de vapeur d'eau (dm/dt). Les deux termes dépendent du refroidissement de la masse d'air qui peut être causé soit par une ascension verticale, soit par l'émission de rayonnement infrarouge ou par contact et mélange avec une autre masse d'air plus froid. Pour maintenir un S_{Ice} élevé ($dS_{Ice}/dt = 0$), il faut qu'il y ait équilibre entre le taux de production et le taux de condensation (P=C). Dans le cas du TIC-2B-F21, les masses d'air subissent un mouvement vertical quasi-nul induisant un faible taux de production. Dans un tel environnement, les parcelles d'air peuvent rester une longue période de temps en quasi-équilibre (P=C) du à un faible refroidissement par rayonnement infra-rouge. Une forte S_{Ice} favorise le taux de croissance d'un cristal par diffusion de vapeur d'eau. Ainsi pour garder un C aussi faible que P, la concentration des cristaux de glace doit être petite, ce qui serait en accord avec les résultats. La faible valeur de N_{ic} peut s'expliquer par la faible concentration de IN disponibles, mesurée

par le CFDC (1-5 L^{-1} en moyenne), combinée à une précipitation rapide des cristaux de glace. Puisque peu de cristaux de glace se forment dans un environnement de forte S_{Ice}, ils grossissent rapidement jusqu'à atteindre la taille de précipitation, comme l'illustre *l'augmentation brusque de R_{ei} entre le sommet et les niveaux inférieurs du nuage.*

Ainsi, pour expliquer la différence dans la microstructure microphysique et thermodynamique des différents TICs, la première hypothèse que l'on peut émettre est que la concentration en nombre des noyaux glaçogènes dans le TIC-2B est plus faible comparée au TIC-1/2A. La faible concentration des noyaux glaçogènes peut résulter soit d'une simple diminution des IN dans la situation où les concentrations initales sont différentes; soit de la désactivation de certains IN par l'effet SIFI dans la situation où la concentration initiale des IN est identique. Cependant, une diminution de la concentration des IN (ex: particules de poussière) entraînerait une RH_{Ice} dans le nuage de glace plus faible que celle observée dans le cas du TIC-2B-F21, puisque que celle-ci est limitée par le mode de nucléation par déposition, comme peut le montrer la Figure 2.14a. La prise en compte de la nature et de la composition chimique des noyaux glaçogènes dont sont composés le TIC-1/2A-F9 et le TIC-2B-F21 est indispensable.

Hoose et Möhler (2012) ont rassemblé et résumé plusieurs résultats en laboratoire identifiants les régions typiques de T_a versus S_{Ice} d'≪apparition≫ (≪onset≫ en anglais) de la nucléation de la glace pour différents types de particules (poussières minérales, suie, particules biologiques, organiques et de sulfate d'ammonium), tout en prenant en compte leurs tailles et la fraction de particules activées (Figure 2.24).

Les observations montrent que les poussières minérales, pour des températures inférieures à -10 °C, sont aussi efficaces à nucléer la glace dans des conditions de saturation par rapport à l'eau liquide (gel par immersion/condensation-gel) que dans des conditions de sous-saturation par rapport à l'eau liquide (nucléation par déposition). Les plus grosses particules ont tendance à nucléer la glace à des valeurs de S_{Ice} plus basses et de T_a plus hautes. La grande majorité des études s'accorde sur une réduction des propriétés glaçogènes des particules minérales recouvertes de diverses solutions (par exemple: l'acide sulfurique, l'acide nitrique, le sulfate d'ammonium et les aérosols organiques secondaires). Ces particules minérales recouvertes nécessitent parfois une S_{Ice} proche de la saturation par rapport à l'eau liquide avant que des cristaux de glace se forment (gel par immersion/condensation-gel) comme nous l'avons expliqué dans les précédents chapitres. En d'autres termes, l'addition d'une substance secondaire sur les particules minérales peut *inhiber le mode de nucléation par déposition pour favoriser le mode de gel*

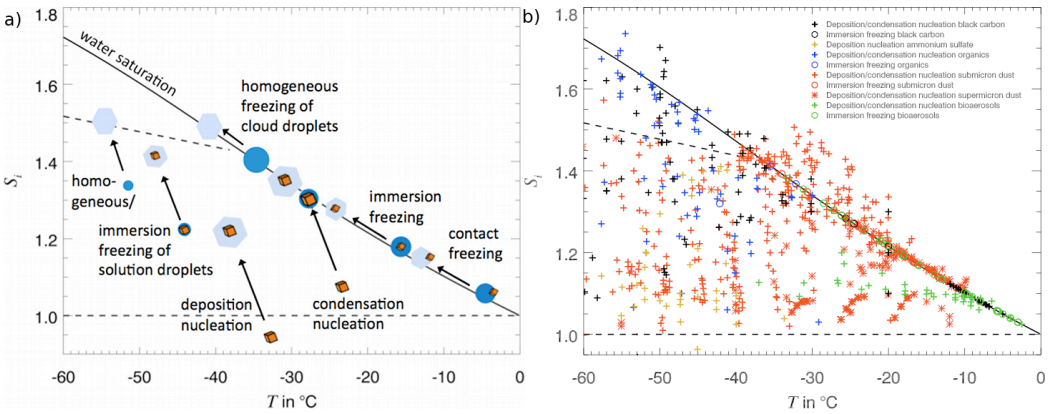

Figure 2.24 Représentation schématique des différents modes de nucléation (a), vue d'ensemble des températures versus sursaturation par rapport à la glace d'«apparition» de la nucléation de la glace (b). Les sources des données sont listées dans Hoose and Möhler (2012).

par immersion/condensation-gel dans un environnement sous-saturé par rapport à l'eau liquide à des T_a supérieures à -38 °C. Cet effet diffère légèrement de la définition de l'effet SIFI définissant un effet d'inhibition de gel induit par les sulfates. *Il serait plus précis de parler d'effet d'inhibition du mode de nucléation par déposition induit par certaines solutions sulfatées et/ou organiques.* Autres que les poussières minérales, il y a aussi un petit nombre de particules biologiques (bactéries, grains de pollen, spores fongiques, etc.) capables de nucléer la glace. D'après les observations, les grains de pollen et les spores fongiques suivent la courbe de saturation par rapport à l'eau liquide entre -40 et -10 °C. Les diatomées (micro-algues) nécessitent des valeurs de T_a inférieures à -40 °C et de S_{Ice} supérieures à 1.3 pour être activées. Les particules biologiques peuvent également être transportées sur des distances semblables aux particules de poussières (Kellogg et Griffin, 2006) avec un temps de résidence dans l'atmosphère variant d'une journée à une semaine. Certaines de ces particules relativement efficaces à nucléer la glace ont déjà été observées en Arctique (Jayaweera et Flanagan, 1982). Les particules solides de sulfate d'ammonium, le sel de mer, certains acides organiques (ex: acide oxalique) et les aérosols carbonés (ex: suie, feux de biomasse, cendres volcaniques, etc.) peuvent parfois agir comme noyaux glaçogènes suivant le gel par immersion/condensation-gel nécessitant des valeurs de S_{Ice} plus élevées; tandis qu'à de faibles T_a (<-40 °C) certaines de ces particules peuvent agir en tant que noyaux de déposition.

L'ensemble de ces résultats obtenus en laboratoire suggèrent que les IN activés dans

la partie supérieure du TIC-1/2A-F9 seraient des particules nucléants la glace à une RH_{Ice} inférieure à 120 % telles que des poussières minérales non recouvertes de solution acide et/ou organique. Au contraire, les IN activés dans la haute troposphère du TIC-2B-F21 pourraient être des particules nucléants la glace à des RH_{Ice} supérieures à 120 % aux basses températures observées (< -30.0 °C), telles que des poussières minérales recouvertes de solution acide et/ou organique; ou bien des particules biologiques, des particules solides de sulfate d'ammonium ou des aérosols carbonés, etc.

Cependant, l'étude des propriétés (taille, concentration, composition chimique, acidité, etc...) des noyaux glaçogènes à l'origine de la formation des TICs a été l'étape la plus problématique dans ce projet de recherche. Nous pensions que le convair-580 était suffisamment équipé d'instruments destinés à l'analyse in-situ des propriétés aérosols. L'avion transportait les compteurs de particules CPC-3775 ($D > 0.004$ μm) et CPC-7610 ($D > 0.004$ μm) (en anglais pour Condensation Particle Counter) pour la mesure de la concentration totale des particules d'aérosols; un PCASP (en anglais pour Passive Cavity Aerosol Spectrometer Probe) ($0.2 < D < 3$ μm) et un spectromètre UHSAS ($0.055 < D < 1$ μm) (en anglais pour Ultra-High Sensitivity Aerosol Spectrometer) pour la mesure de la PDS des particules d'aérosol. Un spectromètre de masse (SPLAT-II) pour la mesure de la concentration et de la composition chimique des aérosols; et un CFDC pour la mesure de la concentration des IN étaient aussi disponibles. Ces instruments, à l'exception des sondes PCASP et CPC-3775, ont aussi bien servi de mesure en aval de la veine communautaire pour échantillonner des particules d'aérosol dîtes «background» en ciel clair ou d'aérosol interstitiel en ciel nuageux; qu'en aval de la veine CVI (en anglais pour Counterflow Virtual Impactor) permettant l'échantillonnage des gouttelettes de nuage ou des cristaux de glace en ciel nuageux et donc l'analyse des particules d'aérosol résiduel (CCN ou IN), extraites des gouttelettes ou des cristaux.

Il s'est avéré que les mesures de la sonde CPC-7610 et du spectromètre UHSAS étaient endommagées durant le projet et que celles de la sonde CPC-3775 ne sont utilisables qu'en dessous de 3.5 km d'altitude au-dessus du niveau de la mer dû à la limitation de l'instrument. Les mesures des sondes PCASP et CFDC sont manquantes pour plusieurs vols ISDAC. Mais l'information que pouvait fournir le SPAT-II sur la concentration et la composition chimique des particules d'aérosols résiduels en ciel nuageux était crucial dans notre étude. Selon Zelenyuk et al. (2010), la concentration en nombre des cristaux de glace est d'un facteur 5 fois plus faible que celle des gouttelettes d'eau, rendant presque impossible la caractérisation des particules d'éarosols ayant servi d'IN. Le post-traitement des données brutes du spectromètre SPLAT II nécessitant beaucoup

de travail et ainsi de temps, ces dernières ne sont pas encore disponibles sur le site de l'AMS.

C'est pour vérifier l'hypothèse concernant le lien entre la formation des TIC-2B et la présence de particules minérales acidifiées que le deuxième article s'intéresse à l'origine et à la composition des masses d'air dans lesquelles les TIC-1/2A-F9 et TIC-2B-F21 d'ISDAC se forment.

CHAPITRE III

ON THE RELATIONSHIP BETWEEN ARCTIC ICE CLOUDS AND POLLUTED AIR MASSES OVER THE NORTH SLOPE OF ALASKA IN APRIL 2008

This chapter is presented in the format of a scientific article. It was submitted in 2012 to the Atmospheric Chemistry and Physics journal. The design of the research and its performance together with the analysis of data and the redaction of this article are entirely based on my work, with the co-authors involved in the supervision of all these tasks.
The detailed reference is :

Jouan[1,2], C., Pelon[2], J., Girard[1], E., Ancellet[2], G., Blanchet[1], J.P. and Delanoë[3], J., 2012: ≪On the Relationship between Arctic Ice Clouds and Polluted Air Masses over the North Slope of Alaska in April 2008≫. Atmospheric Chemistry and Physics.

[1]ESCER Centre, Department of Earth and Atmospheric Sciences, University of Quebec At Montreal, H3C 3P8, Montreal, Quebec, Canada.
[2]Laboratoire Atmosphère, Milieux et Observations Spatiales, 75252, Paris, France.
[3]Laboratoire Atmosphère, Milieux et Observations Spatiales, 78280, Guyancourt, France.

Abstract

Recently, two Types of Ice Clouds (TICs) properties have been characterized using ISDAC airborne measurements (Alaska, April 2008). TIC-2B were characterized by fewer (< 10 L^{-1}) and larger (> 110 μm) ice crystals, a larger ice supersaturation (> 15 %) and a fewer ice nuclei (IN) concentration (< 2 order of magnitude) when compared to TIC-1/2A.

Here, the origin of air masses forming the ISDAC TIC-1/2A (1 April 2008) and TIC-2B (15 April 2008) is investigated using trajectory tools and satellite data. Results show that the synoptic conditions favor air masses transport from the three potentials SO_2 emission areas to Alaska: eastern China and Siberia where anthropogenic and biomass burning emission respectively are produced, and the volcanic region from the Kamchatka/Aleutians. Weather conditions allow the accumulation of pollutants from eastern China/Siberia over Alaska, most probably with the contribution of acid volcanic aerosol during the TIC-2B period. OMI observations reveal that SO_2 concentrations in air masses forming the TIC-2B were larger than in air masses forming the TIC-1/2A. Airborne measurements show high acidity near the TIC-2B flight where humidity was low. These results support the hypothesis that acidic coating on IN could be at the origin of the formation of TIC-2B.

3.1 Introduction

Climate change is proceeding faster and more severely at the high latitudes of the Arctic (ACIA, 2005; IPCC, 2007). Average annual Arctic temperature has been increasing at about twice the global mean rate in the past 50 years. The uncertainties of the amplitude and the evolution of Arctic warming are partly related to a lack of understanding of the contributions of clouds in the energy balance over this region (Dufresne and Bony, 2008). Clouds play a fundamental role both in modulating atmospheric radiation and the hydrologic cycles. This is particularly critical in the Arctic, where interactions can be enhanced by the presence of aerosols (Grenier and Blanchet, 2010; Morrison et al., 2005).

Arctic cloud properties have been investigated in a number of observational studies using aircraft, ground-based remote sensors and satellites. It was recently shown that ice-only clouds are ubiquitous in the upper troposphere during all seasons in the Arctic (Shupe, 2011; Devasthales et al., 2011). Although optically thin ice clouds may have a small effect on the radiation budget at the surface (Intrieri and Shupe, 2004; Lampert et al., 2009), their existence could be important in the Arctic spring to (1) maintain mixed phase low clouds (Morrison et al., 2005; 2012), or (2) in the winter when the warming resulting from the «cloud greenhouse effect (thermal)» dominates (Girard and Blanchet, 2001; Shupe and Inrieri, 2004). Cloud radiative forcing at the surface strongly depends on cloud properties, solar zenith angle, and surface albedo (Shupe and Intrieri, 2004).

The joint detection characteristics of both CloudSat radar and CALIPSO lidar recently reveal the existence of two Types of Ice Clouds (TICs) (namely TIC-2B and TIC-1/2A) in the Arctic during the polar night and early spring (Grenier et al., 2009; Grenier and Blanchet, 2010). Jouan et al. (2012) have characterized the TICs properties using airborne measurements taken during the ISDAC (Indirect and Semi-Direct Aerosol Campaign) campaign, which was conducted over the North Slope of Alaska (NSA) during April 2008 (McFarquhar et al., 2011). Jouan et al. (2012) also tested the ability of a variational synergistic algorithm (Varcloud), combining both radar and lidar satellite observations and developed by Delanoë and Hogan (2008), to retrieve the ice water content (IWC), extinction coefficient and ice crystal effective radius (R_e) in regions of the TICs detected by both of these instruments. Values of the effective radius recovered as a function of the normalized altitude showed that the averaged R_e of the TIC-2B was greater by a factor of $\sim$1.3 on the first 2 km at the top of the ice cloud when com-

pared to the averaged R_e of the TIC-1/2A. From this study, seven ice clouds with low IWC below 0.03 g.m^{-3} and air temperature (T_a) colder than -30 °C have been selected. Two types of ice clouds in this sample have been distinguished. TIC-2B clouds are characterized by fewer (< 10 L^{-1}) and larger (> 110 μm) ice crystals and a larger ice supersaturation (by about 15 % to 20 %) when compared to TIC-1/2A. Based on in-situ ice nuclei (IN) concentration measurements available for several flights, it was shown that the IN concentration was two orders of magnitude lower in the TIC-2B ice clouds when compared to the TIC-1/2A ice clouds. Moreover, most of the differences between these two TICs are located near the cloud top where the nucleation of ice crystals is most likely to occur. In TIC-1/2A case, it was suggested that the dominant nucleation process was the deposition ice nucleation due to an atmosphere not saturated with respect to liquid water. In the TIC-2B case, either immersion or condensation freezing of haze droplets (coated IN) was hypothetized, due to larger relative humidity with respect to ice close to liquid water saturation. Low concentrations of IN combined to the high supersaturated air with respect to ice, lead to an explosive growth of ice crystals by water vapor diffusion. As a result, the TIC-2B ice cloud is composed essentially of a relatively low concentration of precipitating ice crystals whereas the TIC-1/2A ice cloud is composed of a top layer of small ice crystals in relatively large concentrations, which slowly grows to precipitating sizes by water vapor diffusion and followed by collision processes.

Northern Pacific Ocean and Alaska are regions where mineral particles potentially acting as IN in the atmosphere since they are frequently transported from China desertic areas (Uno et al., 2009) and volcanic regions such as Aleutian Islands (Alaska, USA) or Kamchatka Peninsula (Russia) (Yalcin et al., 2002). Depending on the process involved (contact or immersion), a high heterogeneous freezing probability for near source samples was found to occur at various temperatures above -25 °C from laboratory measurements (Durant et al., 2008). However in IN-rich airmasses such as those encountered after a strong desert dust uplift or volcanic eruption, overseeding may lead to a larger number of crystals with smaller crystal sizes depending on available water, which will also depend on the source of particles, as airmasses may keep track of their origin over days at high altitude. Knowledge of the chemical composition of the ambient ice-forming aerosol particles is important in order to understand the physical process of TICs formation. The major source of wintertime and springtime aerosol in the Arctic comes from long-range transport of mid-latitudes anthropogenic pollution. A winter-spring maximum is known as Arctic haze (Uttal et al., 2002; Law and Stohl, 2007;

Hirdman et al., 2010). Sulphate (compounds including the (SO_4^{2-} ion) is the dominant component of these pollutant-enriched aerosols (Barrie and Barrie, 1990; Quinn et al., 2007). Volcanic emissions (releasing sulphate precursor sulfur dioxyde (SO_2)), oxidation of biogenic dimethyl sulfide (DMS) and open biomass burning are also important natural sources of sulphate pollution (Fisher et al., 2011; Warneke et al., 2009). SO_2 must be oxidized to form sulphate before playing a role in aerosol nucleation and the modification of existing particles. The chemical transformation of SO_2 to sulphate in the atmosphere can occur via the gas-phase oxidation (cloud-free air) with the hydroxyl radical (OH) and/or via the oxidation in the aqueous-phase (cloud droplets or pre-existing aerosols) with hydrogen peroxide (H_2O_2), ozone (O_3), and iron catalysis as terminating reactions. These reactions are considered to be the most important sulfur dioxide oxidation pathways on a global scale (Seinfeld and Pandis, 1998). The rates of SO_2 oxidation processes are influenced by many factors such as photochemistry, temperature, atmospheric conditions (especially high relative humidity) and concentration and composition of particulate matter (Seinfeld and Pandis, 1998). It will determine the SO_2 lifetime in the atmosphere. Once the SO_2 gets into the cold, dry, arctic air, the residence time of SO_2 should be increased. When SO_2 is released into the atmosphere, around 46-82 % of the SO_2 emitted undergoes chemical transformations and forms sulphate while the rest is lost through dry and wet deposition (IPCC, 2001; Chin et al., 2000). According to Seinfeld and Pandis (1998), SO_2 is chemically active and has a relatively short averaged atmospheric lifetime of ~2 days while sulphate-containing aerosols have an averaged lifetime of ~4-5 days (Adams et al., 1999). The sulphate in aerosol particles is present as sulfuric acid (H_2SO_4), ammonium sulphate ($(NH_4)_2SO_4$), or intermediate compounds, depending on the availability of gaseous ammonia (NH_3) to neutralize the sulfuric acid (Khoder, 2002).

The hydrophilic property of most sulphate compounds, especially sulfuric acid, makes them particularly efficient as condensation nuclei (CN). Sulphate particles are thus often found as solution droplets in the atmosphere (when not frozen). The role of sulphate in ice nucleation is not well known. Recent laboratory experiments have shown that good ice nuclei such as mineral dust are «de-activated» when they are coated with various species such as ammonium sulphate, ammonium bi-sulphate, sulfuric acid and some organics (e.g. Eastwood et al., 2009; Chernoff et al., 2010). These experiments have shown that the onset ice supersaturation at which ice nucleation occurs (in the immersion mode of unactivated haze droplets) is substantially increased close to the liquid saturation point when the kaolinite particles are coated with sulfuric acid compared to

uncoated particles (in the deposition mode). According to Sullivan et al. (2010), the IN de-activation effect of sulphuric acid on dust particle is irreversible and still effective once the acid has been neutralized with ammonia.

Blanchet and Girard (1994) and Grenier et al. (2009; 2010) have hypothesized that the decrease of the ice nuclei concentration associated to highly acidic aerosols leads to a smaller concentration of ice crystals. Because of the reduced competition for the same available moisture, ice crystals reach larger sizes. As a result, large ice crystals form in relatively small concentrations, leading to precipitation, e.g. cloud regime TIC-2B. Therefore, the ice crystal precipitation rate and the rate of dehydration of the lower troposphere increase while the water vapor and TIC-2B greenhouse effect decrease at the expense of non-precipitating ice clouds. At cold Arctic winter temperature, the greenhouse effect in the so-called dirty window (17 to 35 μm) is especially sensitive to atmospheric dehydration. Positive feedback is created between the mid- and lower-troposphere cooling and dehydration efficiency, increasing the production rate of cold and dry air masses. This process is referred to as the Dehydration Greenhouse Feedback (DGF) (Blanchet and Girard, 1994; Girard, 1998). During winter, the extent to which sulphate coated-aerosol is neutralized can have an important effect on cloud microphysics and on the surface energy budget of the Arctic.

In this paper, the origin of the air masses in which the ISDAC TIC-1/2A (1 April 2008) and TIC-2B form (15 April 2008), identified in Jouan et al (2012), is investigated to verify the hypothesis regarding the potential link between acidic aerosols and TIC-2B, considering information gathered from the ARCTAS-A (Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites – April 2008 – Alaska) (Jacob et al., 2010) and ISDAC field experiments and trajectory analyses. This paper is organized as follows. In Section 3.2, temporal variability of Alaska-averaged sulfur dioxide pollution from satellite data is presented with the meteorological conditions associated during March-April 2008. Section 3.3 and 3.4 list the main potential sources of sulfur dioxide and transport pathway in Alaska during this reporting period, using a lagrangian approach with the FLEXPART model for the study of the long-range transport. Detailed analysis of sources and characteristics of air masses measured on TIC-1/2A and TIC-2B specific cases, investigated in details in Jouan et al. (2012) during the ISDAC campaign, are carried out in the section 3.5. Results are discussed by examining the CALIPSO satellite tracks, which intersects the backtrajectories in the region away from the airborne measurements. A discussion and conclusions are presented in sections 3.6 and 3.7 respectively.

3.2 Alaskan pollution and meteorological conditions in April 2008

Satellite measurements provide complementary information on the atmospheric abundance of various gas species. In this study, the ability of the UV (Ultraviolet) and visible spectrometer OMI (Ozone Monitoring Instrument) was used to detect sulfur dioxide. OMI is flying on board the NASA's Earth Observing System (EOS)-Aura satellite since July 2004. Aura is a polar orbiting satellite with a nadir ground foot print of 13 x 24 km^2 and a 2600 km cross track swath providing daily and contiguous global mapping of the trace gas species.

The operational OMI SO_2 algorithms require an a priori assumption of SO_2 vertical distribution. For each OMI footprint, OMI SO_2 data products provide four values of total SO_2 column density: SO_2 in the Planetary Boundary Layer (PBL, below 2 km) from anthropogenic sources SO_2 in the lower troposphere (TRL, between 0 to 5 km), mid-troposphere (TRM, between 5 to 10 km) and upper troposphere or lower stratosphere (STL, between 15 to 20 km); all optimized for volcanic activities. These algorithms use the SO_2 absorption bands between 310 and 360 nm to retrieve the column density of SO_2. PBL SO_2 data are derived using the Band Residual Difference (BRD) algorithm (Krotkov et al., 2006). SO_2 data for the other altitudes (TRL, TRM, STL) are retrieved using the Linear Fit (LF) algorithm (Yang et al., 2007). The user must select the most appropriate SO_2 product for the prevailing geophysical conditions. The SO_2 from industrial air pollution is likely to be confined to the PBL, while SO_2 from effusive eruptions or degassing of volcanoes is likely to spread in the free troposphere from the summit of the volcano to 5-10 km altitude (Yang et al., 2007). The total SO_2 column density is given in Dobson Units (1 DU = 2.69 x 10^{16} molecules.cm^{-2}).

The OMI Level 2G daily gridded (0.125 x 0.125 °) SO_2 products are used to assess qualitatively the temporal variability of SO_2 over the study area of Alaska. OMI L2G SO_2 products were acquired using the GES-DISC Interactive Online Visualization ANd aNalysis Infrastructure (GIOVANNI) developed by the NASA Goddard Earth Sciences (GES) Data and Information Services Center (DISC). OMI L2G SO_2 products were filtered to remove data with high radiative cloud fraction (> 0.3), large solar zenith angle (> 70 °) and anomalous scenes. Data include only those for which the Quality Flags bit 0 was not set, and thus defined as «good data» (GIOVANNI website : http://disc.sci.gsfc.nasa.gov/giovanni/overview/index.html). For example, the standard deviation of TRM retrievals in background areas is about 0.3 DU at mid-latitudes. Both the bias and standard deviation increase with solar zenith angle.

Recent validation of OMI total SO_2 column density measurements confirms that OMI is an effective tool for evaluation of anthropogenic and natural SO_2 emissions. Good qualitative agreement was found between airborne and OMI measurements for the low altitude anthropogenic sources (Krotkov et al., 2008) as well as strong quantitative agreement between ground-based, airborne and OMI measurements for both eruptive and non-eruptive volcanic emissions at higher altitudes (Spinei et al., 2010; Lopez et al., 2012). However, in each case, the analyses were performed just above the area of emission of SO_2 putting aside the question of the ability of OMI to discriminate sources of SO_2. Preliminary surveys of volcanic OMI SO_2 data indicate that the OMI's detection limit for high latitude and springtime conditions varies from ∼2000 to 4000 tons of sulfur dioxide emitted per day (Lopez et al., 2012). Detection of weaker sources usually requires temporal averaging of the OMI SO_2 data.

The daily variability of the area-averaged SO_2 total column above Alaska (studied area can be seen in Figure 3.1) in mid-troposphere from 27 March to 25 April 2008, shown in Figure 3.2, is characterized by periods of lower and higher SO_2 levels. As already mentioned above, most of the differences between TICs are located near the cloud top where the nucleation of ice crystals is most likely to occur, which is why the SO_2 concentrations observed by OMI in the mid-troposphere will be used. Two mean periods were distinguished. The period A (27 March-9 April) is characterized by a relatively low concentration of SO_2 in the range of 0 to 0.12 DU. The period B (10-25 April) is characterized by a concentration of SO_2 3 times higher when compared to the Period A, in the range of 0.06 to 0.39 DU. Peaks of high concentrations are recorded between 13 to 15 April and 20 April, with values greater than 0.25 DU. These SO_2 column amount were calculated based on an assumed SO_2 altitude ranging from 5 to 10 km (TRM OMI L2G SO_2 products) and averaged over the region of Alaska. They should be considered preliminary estimates. Atkinson et al. (2011) analyzed the temporal evolution of sulfur species over the period 25 March through 30 April 2008 from a DRUM impact sampler system operating at 50 km north of Fairbanks. In agreement with the OMI results, the authors notice a low concentration of sulfur (< 50 ng.m^{-3}) during the first week of April followed by a period of high concentration of sulfur 2-4 times higher than the first week from 7 to 29 April, 2008. The observed variations may originate from changes in source intensity and/or from interactions and modification processes during transport. Only SO_2 observations from OMI in the upper part of the troposphere are considered in this paper. When lifted to the free troposphere (higher than 2000 m), the atmospheric SO_2 has a longer lifetime, and the long-range transport

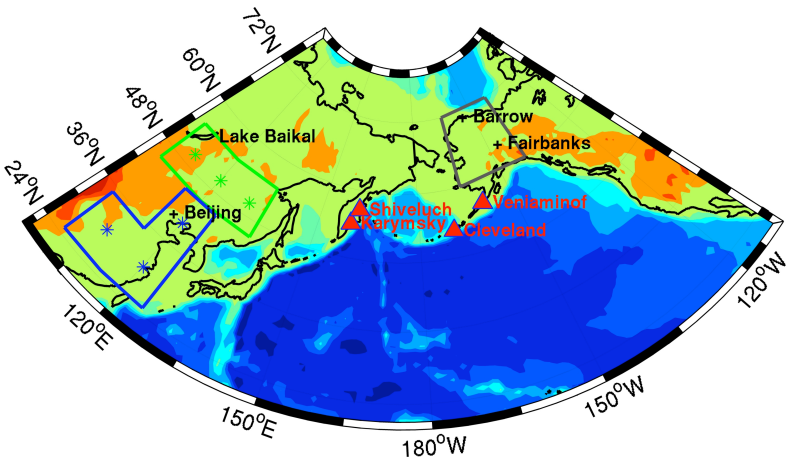

Figure 3.1 Study Area: Alaska [195-220 °W; 60-72 °N – in gray] and Domains of potential SO_2 emission to Alaska used for the FLEXPART simulations; the north-eastern China Anthropogenic Emission [AE - in blue]; the south-eastern Russia Biomass Burning Emission [BBE - in green] and the Volcanic Emission [VE - in red] from the Kamchatka Peninsula and Aleutians. In red triangle, the position and name of active volcanoes during April 2008.

of atmospheric SO_2 from China, for exemple, becomes more efficient (Tu et al., 2004). It is however expected that part of tropospheric SO_2 is removed by dry deposition or oxidization to form sulphate aerosols during transport to Alaska. He et al. (2012) investigated the budget and transport of SO_2 and sulphate in central and eastern China in April 2008 using the Community Multiscale Air Quality (CMAQ) model to simulate sulfur chemistry. Numerical simulations indicate that ∼50 % of the anthropogenic sulfur emissions were transported downwind, and the overall lifetime of tropospheric SO_2 was 38±7 h, which may cause a more difficult detection of SO_2 after 2-3 days. Then it should be consider that cloud processing and wet deposition may also be a source of modification during transport which may differ during both periods. Moreover, several factors can change the OMI SO_2 signal: chemical reaction of SO_2 can reduce the signal as lofting of the plume (change of SO_2 vertical distribution) can enhance the signal.

During period A.1 (27 March-2 April), the synoptic pattern was dominated by the presence of a main low-pressure system over the Siberian coast (above the Laptevykh Sea) with a series of low-pressure systems forming over Japan and moving slowly north northeastward toward the Bering Sea (see Figure 3.3a). This synoptic pattern sets up a flow trajectory directed initially to the eastern China/Siberia to the east northeastward

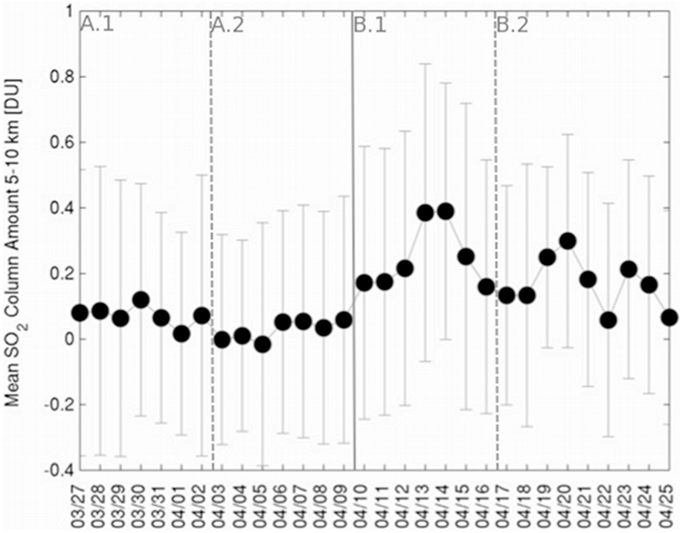

Figure 3.2 Daily variability of the area-averaged SO_2 total column above Alaska (Figure 3.1) from 27 March to 25 April 2008 based on an assumed SO_2 altitude between 5 to 10 km (TRM OMI L2G SO2 products). Vertical lines represents the standard deviation. Results should be considered preliminary estimate.

toward the Aleutians into Alaska. During period A.2 (3-9 April), the main low-pressure system moved up into Alaska; the latter, combined with the anticyclone in the central North Pacific, pushes the Asian exit flow eastward without passing through Alaska from 3-9 April 2008 (see Figure 3.3b).

Period B (10-25 April) was dominated by two distinct synoptic patterns. From 10 to 16 April (period B.1), the weakening of the low-pressure system over Alaska and the persistence of the high-pressure system in the central North Pacific allow the establishment of a more zonal pattern in the north that pushes the Asian exit flow northwards into Alaska and the Siberian exit flow directly eastward into Alaska (see Figure 3.3c). Between the 17 and 25 April (period B.2), the anticyclone in the central North Pacific was split into two weaker high-pressure systems by the incursion of a low-pressure system between them. Further north, the combination of a low-pressure system from the west into the Kamchatka/Aleutians with a high-pressure system into the Alaska took place (see Figure 3.3d). This leads to the formation of a pressure ridge, thus increasing the transport distance between northeastern China/southeastern Siberia and Alaska. These results suggest that the synoptic conditions encountered during periods A.1, B.1 and B.2 favor air mass transport from eastern Asia/Siberia to Alaska via the volcanic area,

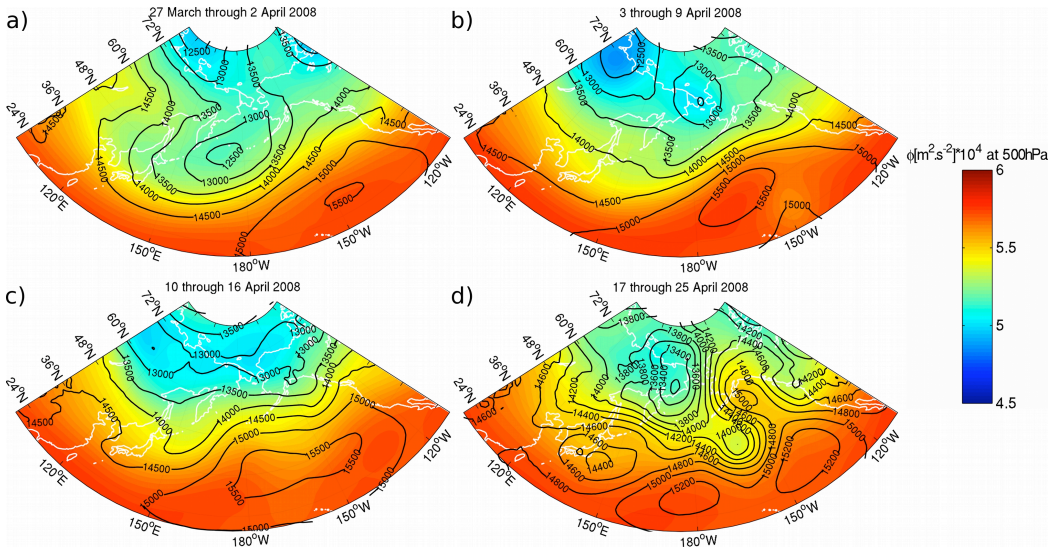

Figure 3.3 Mean geopotential ($m^2.s^{-2}$) at 850 hPa (contour) and 500 hPa (colorbar) from 27 March to 2 April (a), 3 to 9 April (b), 10 to 16 April (c) and 17 to 25 April (d), 2008.

with a longer travel time during period B.2. However, the synoptic pattern on Period A promotes air mass transport over a long distance above the North Pacific Ocean providing opportunity to aerosol loss by wet deposition into the marine convective boundary layer, whereas the time of air masses spent over the ocean is significantly shorter during the period B. This could explain the high concentration of SO_2 accumulated during B above Alaska compared to the period A.

3.3 Potential sources of SO_2 pollution in Alaska

The average column density of SO_2 over April 2008 from anthropogenic sources over the northern hemisphere is shown in Figure 3.4. In this study, the OMI Level 3 daily gridded (0.25 x 0.25 °) products (available at http://disc.sci.gsfc.nasa.gov/Aura/data-holdings/OMI/omSO2e_v003.shtml) are used to study qualitatively the anthropogenic sources. OMI L3 SO_2 products correspond to the Level 2 PBL SO_2 products filtered for clouds and post-corrected using the methodology of Lee et al. (2009). The standard deviation for this product is ∼1.5 DU for instantaneous field of view of PBL SO_2 data, but temporal and spatial averaging can reduce the noise by one third. Given this large noise, only SO_2 pollution from strong anthropogenic sources and from strong regional

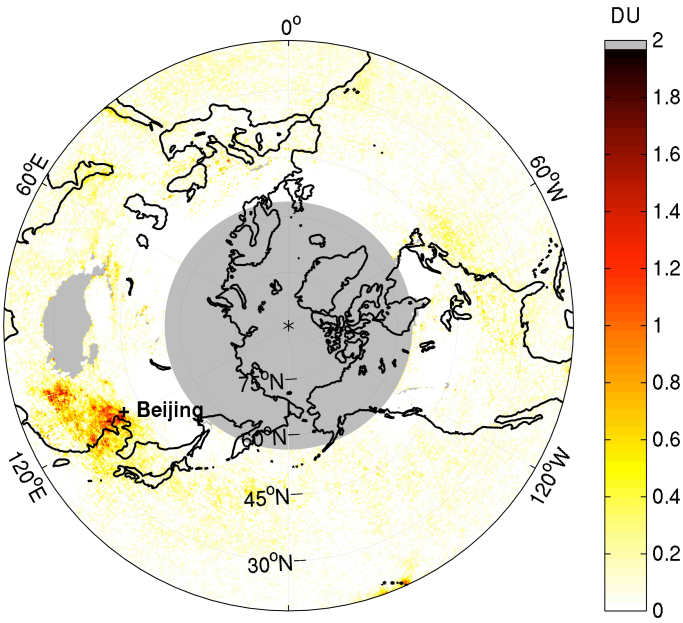

Figure 3.4 Monthly mean SO_2 total column based on an assumed SO_2 altitude below 2 km (PBL OMI L3 SO2 products) over the northern hemisphere in April 2008.

pollution can be detected in daily data (Carn et al 2007; Krotkov et al 2008). The highest values, of more than 1.2 DU, are found over eastern China due to the abundance of coal power plants, metal ores, smelting industry and fossil fuel consumptions in these regions. In April 2008, China was one of the largest contributing countries of sulfur dioxide in the northern hemisphere. Lu et al. (2010) estimated the annual SO_2 emission of China to be around ∼32.1 Tg in 2008.

During the same period, intense Biomass Burning (BB) occurred in southern Russia/Kazakhstan and southeastern Siberia, mainly related to agricultural and boreal forest fires respectively (Warneke et al., 2009, 2010). Figure 3.5 shows fire activity during April 2008 as indicated by the MODerate resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) fire counts (http://neespi.gsfc.nasa.gov/myd14cm1.shtml) in the northern hemisphere. This product presents the total number of fire pixels observed in each grid cell, corrected for multiple satellite overpasses, missing observations, and variable cloud cover.

East Asian anthropogenic emissions and Russian fire emissions contributed to aerosol loading found over the North American Arctic (NAA) during the winter-spring season

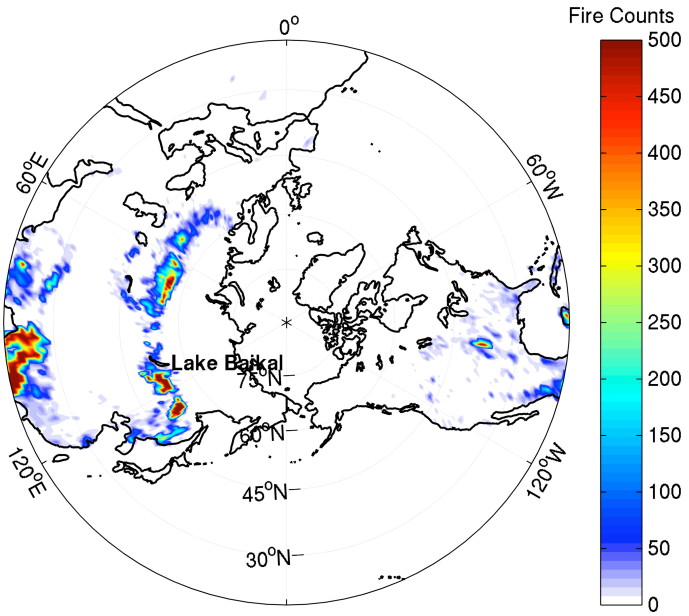

Figure 3.5 Fire counts on April 2008 from the MODIS Aqua satellite instrument cloud- and overpass- corrected, over the northern hemisphere.

2008 (Brock et al., 2011; Jacob et al., 2010; Harrigan et al. 2011). This mixture of anthropogenic sulphate along with BB has followed similar pathways of transport and uplift over the NAA free troposphere (Harrigan et al., 2011) (see Figure 3.3). Sulphate aerosols emitted over this area would still be moderately to highly acidic depending on the availability of the large NH_3 source from BB (Fisher et al., 2011).

Volcanoes are another significant natural source and provide emissions of sulphate throughout the troposphere that is not neutralized by natural ammonia emission, thus keeping a higher degree of acidity. There were some volcanic activities over the Aleutian Islands and Kamchatka Peninsula in winter-spring 2008. Continuous degassing activities were common on Cleveland and Veniaminof volcanoes located in the Aleutians. In addition, sustained eruptive activities were recorded at Karymsky and Shiveluch volcanoes located in the Kamchatka Peninsula (see Figure 3.1). The Veniaminof and Cleveland volcanoes were monitored by the volcanologists of the Alaska Volcano Observatory (AVO). The Karymsky and Shiveluck volcanoes were monitored by the volcanologists of the Kamchatka Volcanic Eruption Response Team (KVERT). Using seismic data, satellite images and internet camera data, the daily volcano activity notifications on the websites of AVO (http://www.avo.alaska.edu) and KVERT (http://www.kscnet.ru) noted

the presence of persistent activity in Aleutians volcanoes and reported several weak ash-and-gas explosions occurring daily during the reported period in Kamchatka volcanoes. It should be noted that monitoring volcanic eruptions is often challenging due to the remoteness of many of the volcanoes in the region, making a local monitoring network difficult to establish and maintain. Cloudy weather also regularly hinders the ability of satellites to measure SO_2 content and thus detect related eruptions. For these reasons, it is very difficult to quantify the emission of SO_2 above the volcanoes for a long period such as one month.

3.4 Transport patheways

Three regions of potential SO_2 emissions to Alaska were defined in the previous section: the northeastern China Anthropogenic Emission (AE), the southeastern Siberia Biomass Burning Emission (BBE), and the Volcanic Emission (VE) from the Kamchatka/Aleutians (see Figure 3.1). Fisher et al. (2011) found that East Asian anthropogenic sources were the largest contributors of sulphate during ARCTAS-A and ARCPAC (Aerosol, Radiation, and Cloud Processes affecting Arctic Climate – April 2008 – Alaska) (Brock et al., 2011) field missions, through transport in the free troposphere, followed closely by the European anthropogenic sources contributions at all altitudes during April 2008. The distance, to which highly polluted and possibly acidic air masses are transported, largely depends on the atmospheric circulation and conditions. Dry and wet depositions and chemical reactions play an important role on gas and aerosol lifetime. To assess the abundance and acidity of aerosols over Alaska in April 2008, one has to account for these factors.

In the current study, favorable periods of pollution transport are defined with the mean travel time from the three emission domains to the Alaska domain (see Figure 3.1) during April 2008 using the Lagrangian Particle Dispersion Model (LPDM) FLEXPART version 6 (Stohl et al., 1998; 2002). FLEXPART was driven by meteorological input data from the 6-hourly European Center for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) analysis interleaved with operational forecasts every 3 hours. In addition to classical advection, the LPDM includes turbulent diffusion, deposition and parameterizations of sub-grid scale convection. Results are discussed using forward trajectories to describe pollution transport to the Arctic. Ten-day forward trajectories were calculated with the FLEXPART model during the period of 22 March through 20 April 2008. The simulations were initialized each day at 12:00:00 UTC from 3 boxes in the AE domain

and 3 boxes in the BBE domain. From the Kamchatka/Aleutians, five-day forward trajectories were calculated during the period of 27 March through 25 April 2008. The simulations were initialized each day at 12:00:00 UTC from 3 boxes located near the volcanoes of interest (VE). Box positions are shown using stars in Figure 3.1. The height of all boxes was between 2000 and 2500 m. The starting point of a FLEXPART forward-trajectory is represented by a box with the following size: 0.5° lat. x 0.5° lon. x 500 m alt. For a selected box, 2000 particles are released during 60 min. The dispersion is described by the position of 5 clusters, each containing associated fractions of particles. Tables 3.1, 3.2 and 3.3 give the travel time, the end point altitude/date and the fraction of particle reaching Alaska from the 3 boxes of the AE, BBE or VE domains, each day. From 22 March to 20 April 2008, only 4.9 % of particles leaving the AE domain reached Alaska against 8.1 % from the BBE domain. The average travel time of these trajectories to reach Alaska was about 6±2 days (Tables 3.1 and 3.1). From 27 March to 25 April 2008, 32.2 % of particles leaving the 3 boxes of VE domain reached Alaska less than a day (Table 3.3). Considering the arrival date of particles from AE, BBE and VE domains to Alaska (Table 3.1), it is noted that an average of ∼10-12 %, ∼10-20 % and ∼37-50 % per day of particles emitted, respectively, from AE, BBE and VE domain boxes reached Alaska during periods A.1, B.1 and B.2, respectively. Almost no air mass emitted from the three domains reached Alaska during period A.2. These results, combined with the synoptic conditions described in the previous section, confirm that the low concentration of SO_2 recorded by OMI during the period A.2 is due to unfavorable weather conditions for the transport of pollution into Alaska. The proximity of the source implies that the volcanic air masses have a larger impact on the Alaska domain compared to the air masses from eastern China/Russia. However, one has to consider that the air masses from eastern China/Russia pass generally over the volcanic zone before reaching Alaska, as shown by the weather conditions reported previously (Figure 3.3).

The OMI SO_2 L2G data were used to assess qualitatively the transport of SO_2 in the free troposphere from anthropogenic and natural sources. Figure 3.6 shows the evolution and transport of the OMI total column density of SO_2 in the mid-troposphere (5-10 km) for ISDAC periods A.1, A.2, B.1 and B.2 (Figure 3.2), over the Eastern part of Asia/Russia to Alaska. At first glance, a low concentration of SO_2 is recorded by OMI in mid-trosposphere above the Kamchatka/Aleutians during the period A.1 compared to the other three periods (Figure 3.6a). More surprisingly, there is even a higher concentration of SO_2 above the VE domain during the period B.2 when a lower

Table 3.1 List of days on which FLEXPART simulated 10-day froward trajectories from the north-eastern China AE domain reached the Alaskan domain, with the particles' fraction, travel time, altitude and date of arrival associated, from the end of March to the end of April, 2008. Total number of trajectories reaching Alaska = 4.3 %.

Initial Date y/m/d	Trajectories Nb	Travel Time Days	Arrival Altitude km	Arrival Date y/m/d
08/03/22	1	9	4.9	08/03/31
08/03/23	3	8±1	5.67±1.43	08/03/31
08/03/25	5	7±2	5.76±0.03	08/04/01
08/03/26	4	7±2	5.94±0.06	08/04/02
08/03/27	3	4	5.48±2.11	08/03/31
08/03/28	1	6	3.4	08/04/03
08/03/29	1	4	7.26	08/04/02
08/03/30	3	4±1	6.24±0.10	08/04/03
08/03/31	1	4	7.26	08/04/04
08/04/05	1	6	2.94	08/04/11
08/04/06	2	8	2.9±0.01	08/04/15
08/04/08	1	5	3.9	08/04/13
08/04/09	3	5±3	5.78±1.69	08/04/14
08/04/11	6	5±2	4.42±1.32	08/04/16
08/04/12	2	8±1	6.95±4.13	08/04/20
08/04/13	1	3	4.9	08/04/16
08/04/14	6	6±1	9.03±1.59	08/04/20
08/04/15	1	9	4.46	08/04/24
08/04/16	2	6±2	7.28±2.99	08/04/22
08/04/17	4	9	6.8	08/04/26
08/04/18	1	6	6.46	08/04/24
08/04/20	7	5±2	6.66±1.57	08/04/25
	Mean	6.03±2.08	6.04±1.93	

pollution rate is measured above the AE/BBE domains (Figure 3.6d). These results suggest that volcanoes from Kamchatka/Aleutians were more active during periods A.2, B.1 and B.2 compared to period A.1. Therefore, the high concentration of SO_2 recorded over Alaska during the period B appears to be mostly of volcanic origin and therefore more acidic than during the period A.1. However, it is difficult to discriminate the SO_2 sources in the Alaska area knowing that the air masses can have been influenced by the three defined SO_2 sources. Also, one has to keep in mind the limits of OMI signal, which can be reduced by the chemical reaction of SO_2 into sulphate.

Table 3.2 List of days on which FLEXPART simulated 10-day froward trajectories from the south-eastern Russia BBE domain reached the Alaskan domain, with the particles' fraction, travel time, altitude and date of arrival associated, from the end of March to the end of April, 2008. Total number of trajectories reaching Alaska = 13.1 %.

Initial Date y/m/d	Trajectories Nb	Travel Time Days	Arrival Altitude km	Arrival Date y/m/d
08/03/23	1	8	4.72	08/03/31
08/03/24	1	7	4.42	08/03/31
08/03/25	2	8±1	5.29±0.99	08/04/02
08/03/26	2	4±1	4.63±0.39	08/03/30
08/04/02	1	8	4.15	08/04/10
08/04/03	2	8±1	3.30±1.45	08/04/11
08/04/06	2	6±1	3.45±0.82	08/04/12
08/04/07	1	9	3.16	08/04/16
08/04/08	4	5±1	3.04±8.46	08/04/13
08/04/09	1	8	3.21	08/04/17
08/04/11	1	8	2.72	08/04/19
08/04/12	6	6±1	3.33±1.79	08/04/18
08/04/13	5	4±1	4.65±0.27	08/04/17
08/04/14	4	2±1	5.29±0.20	08/04/16
08/04/16	2	8±1	5.10±0.47	08/04/14
08/04/17	1	8	4.48	08/04/25
08/04/18	3	4±1	7.30±1.37	08/04/22
	Mean	5.67±2.25	4.33±1.47	

3.5 Polluted air masses - Arctic ice cloud Interactions: case studies

3.5.1 ISDAC specific cases: overwiew and methodology

Two ice clouds representing each type of TICs (TIC-1/2A and TIC-2B) observed during the ISDAC campaign were investigated in detail in Jouan et al. (2012). The TIC-1/2A on Flight F9 was observed over the Barrow site on 1 April 2008 from 23:13:43 UTC to 23:45:43 UTC, corresponding to the relatively clean period A.1 identified in section 2. The case of TIC-1/2A-F9 was sampled on a downdraft spiral in an area close to a warm front. The TIC-2B on Flight 21 was observed on 15 April 2008 from 00:55:26 UTC to 01:17:23 UTC, corresponding to the period B.1 that is heavily loaded with SO_2 as identified in section 3.2. The case of TIC-2B-F21 was sampled on an updraft spiral in the center of a decaying low-pressure system.

Table 3.3 List of days on which FLEXPART simulated 5-day forward-trajecotires from the VE domain reached the Alaskan domain, with the particles' fraction, travel time, altitude and date of arrival associated, from the end of March to the end of April, 2008. Total number of trajectories reaching Alaska = 32.3 %.

Initial Date y/m/d	Trajectories Nb	Travel Time Days	Arrival Altitude km	Arrival Date y/m/d
08/03/27	3	2±1	2.08±0.07	08/03/29
08/03/28	10	1	2.87±1.09	08/03/29
08/03/29	10	0	2.76±0.40	08/03/29
08/03/30	10	1	1.95±0.61	08/03/31
08/03/31	10	1±1	2.48±0.22	08/04/01
08/04/01	9	2±1	1.79±0.83	08/04/03
08/04/02	5	0	3.04±0.26	08/04/02
08/04/03	10	1±1	2.70±0.28	08/04/04
08/04/09	6	2±1	2.80±1.18	08/04/11
08/04/11	3	1±1	4.07±0.77	08/04/12
08/04/14	3	3±1	1.85±0.14	08/04/17
08/04/15	9	2±2	2.55±1.12	08/04/17
08/04/16	10	1±1	1.19±0.40	08/04/17
08/04/17	6	0	2.75±0.40	08/04/17
08/04/18	10	0	2.46±0.16	08/04/18
08/04/19	5	0	2.18±0.29	08/04/19
08/04/22	6	1±1	2.48±0.62	08/04/23
08/04/23	5	0	2.29±0.22	08/04/23
08/04/24	10	1	3.13±0.43	08/04/25
08/04/25	5	0	3.73±0.80	08/04/25
	Mean	0.89±1.06	2.50±0.84	

In this section, the origin of the different observed air masses from which the TIC-1/2A-F9 and TIC-2B-F21 form is investigated in more details. Results are discussed examining the CALIPSO satellite tracks, which intersect the back-trajectories in the region away from the TICs layers observed by the aircraft and/or satellites to analyze aerosol occurrence and optical properties. The objective is to investigate in depth the link between TIC-2B formation and acidic aerosols using a lagrangian approach previously developed by Adam de Villiers et al. (2010b). It will be briefly described here. Both spiral profiles of flights F9 and F21 are divided in 13 boxes between 1 km and 7.5 km in altitude (500 m x 0.5 °). The focus is put on the origin of air masses near the top of the cloud ($zt_{\text{TIC-1/2-F9}}$ = 6.65 km and $zt_{\text{TIC-2B-F21}}$ = 6.75 km altitude from ISDAC airborne measurements - see Jouan et al., 2012), where most of the differences between

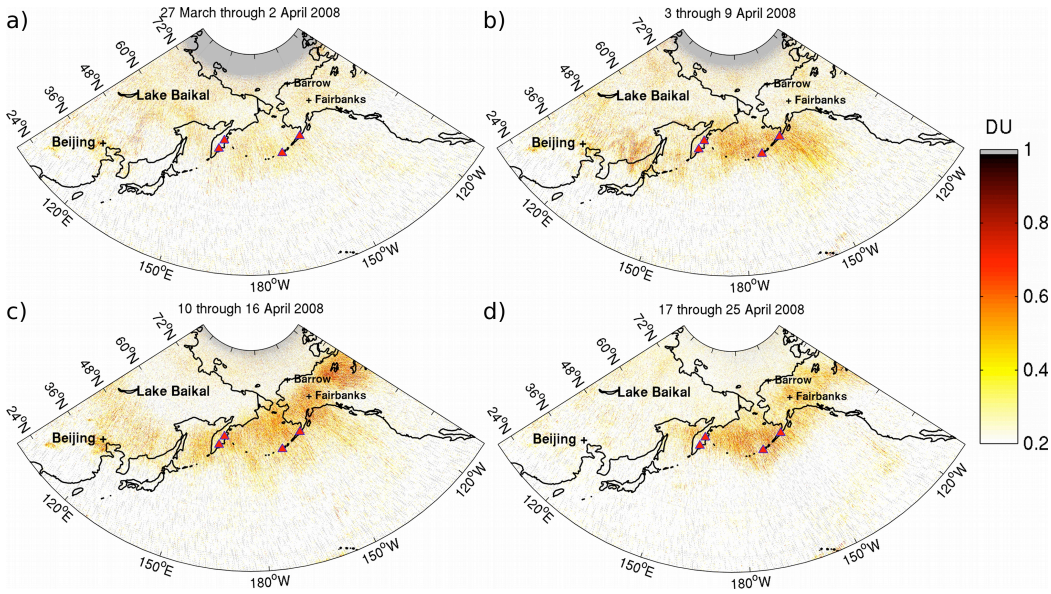

Figure 3.6 Mean SO_2 total column based on an assumed SO_2 altitude between 5 to 10 km (TRM OMI L2G SO_2 products) from 27 March to 2 April (a), 3 to 9 April (b), 10 to 6 April (c) and 17 to 25 April (d) 2008.

the two clouds are found (Jouan et al., 2012). For a selected box, 2000 particles are released during 60 min. The particles dispersion is computed every 24 h during several days backward in time prior to the measurements and described by the averaged position of 5 clusters. 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 represents the altitude of the ending point. Air mass trajectory estimates remain coherent when the 5 clusters (or at least the largest ones) stay close to each other (e.g. Figure 3.7). CALIPSO tracks were selected when the time and horizontal position of the satellite overpass was less than 2 hours and 200 km respectively from air mass positions estimates by the FLEXPART simulations (e.g. Figure 3.8). The variational synergistic algorithm (Varcloud) developed by Delanoë and Hogan (2008) was used here to identify cloud and aerosol properties. This algorithm combines radar and lidar observations to retrieve the ice water content (IWC), extinction and ice crystal effective radius (R_e) in regions of the cloud detected by both instruments. These operational products are called DARDAR (raDAR/liDAR) and are available at the data center ICARE (http://www.icare.fr) in France. More details on DARDAR can be found in Delanoë and Hogan (2008; 2010). Jouan et al (2012) have demonstrated

Table 3.4 T_a, $\beta_a tt$, Z, IWC, R_e and IWC/R_e from VarCloud Algorithm of different ice cloud layers defined in Figures 9 and 12 with their associated standard deviation, according to the normalized altitude.

Cloud Layer (CL)	z/z_t	T_a °C	β_{att} $\log_{10}sr^{-1}.m^{-1}$	Z dBZ	IWC $10^{-3}g.m^{-3}$	R_e μm	IWC/R_e $g.m^{-4}$
TIC-1/2A	1.0-0.9	-44±2	-5.31±0.20	-30.0±2.3	14.3±5.4	27.6±1.2	515±191
F9	0.9-0.8	-38±2	-5.25±0.09	-22.7±1.9	23.0±4.8	33.6±2.5	690±88
71.0-71.5°N	0.8-0.7	-32±2	-5.45±0.06	-16.7±2.0	25.3±1.4	40.7±2.2	616±64
z_t=7.60km	0.7-0.6	-26±2	-5.45±0.05	-12.2±1.2	28.1±2.6	46.6±1.9	581±24
	1.0-0.9	-55±2	-5.09±0.34	-27.9±3.1	12.4±5.9	30.0±2.0	400±183
$CL_{F9}1$	0.9-0.8	-48±3	-5.55±0.37	-22.1±0.7	11.6±3.9	35.5±1.5	332±131
56.3-56.7°N	0.8-0.7	-40±3	-5.48±0.28	-15.3±4.6	21.5±12.0	42.8±3.2	479±239
z_t=9.72km	0.7-0.6	-32±3	-5.90±0.47	-9.1±1.0	64.8±10.4	51.2±2.3	1148±94
TIC-2B	1.0-0.9	-41±1	-5.69±0.11	-30.0±2.0	3.8±0.9	36.8±1.0	104±26
F21	0.9-0.8	-39±1	-5.59±0.10	-21.6±3.5	6.1±2.2	41.7±2.4	143.±39
71.0-71.5°N	0.8-0.7	-35±2	-5.31±0.09	-12.8±1.8	15.7±2.8	49.4±2.0	311±45
z_t=5.94km	0.7-0.6	-31±1	-5.46±0.14	-14.0±2.3	12.1±3.3	49.4±1.8	239±59
	1.0-0.9	-48±2	-5.81±0.14	-31.3±1.5	3.1±0.8	33.2±1.2	92±21
$CL_{F21}1$	0.9-0.8	-41±2	-5.67±0.08	-29.1±0.9	3.9±0.3	36.2±0.8	109±10
66.5-67.0°N	0.8-0.7	-34±2	-5.48±0.27	-22.1±5.7	6.7±4.0	41.8±3.7	155±75
z_t=7.62km	0.7-0.6	-29±2	-5.16±0.20	-11.4±1.8	22.7±3.5	50.9±1.1	441±62
	1.0-0.9	-55±2	-5.93±0.23	-30.4±1.7	2.5±0.9	31.7±2.2	76±24
$CL_{F21}2$	0.9-0.8	-46±3	-5.50±0.09	-23.6±2.9	5.1±1.0	38.2±2.2	134±17
58.0-58.5°N	0.8-0.7	-38±3	-5.49±0.07	-18.4±0.8	6.4±0.4	44.4±2.3	144±15
z_t=10.44km	0.7-0.6	-30±2	-5.51±0.09	-11.1±3.8	10.8±4.7	58.7±6.4	178.±57

the ability of DARDAR to identify ice clouds of type TIC-1/2A and TIC-2B observed during the ISDAC campaign. Taking the A-Train overpass track closest in time and space from the studied ISDAC profiles F9 and F21 (discussed below), they quantified the mean values of T_a, β_{att}, Z, IWC and R_e retrieved from the Varcloud algorithm as a function of the normalized altitude of ice cloud layers within the TIC-1/2A and the TIC-2B. The ratio IWC/R_e is also calculated to get a representation of the ice particle number concentration in the cloud: mean values are presented in Table 3.4. The operational CALIOP aerosol data (version 3.01) is also used along the selected CALIPSO track. These products provide the optical properties of aerosol layers averaged every 5 km horizontally (Liu et al., 2009). Two additional criteria are considered: the layers detected only at a horizontal resolution of 80 km and an optical thickness at 532 nm over 0.03. These two conditions are needed to identify aerosol layers with low optical depths (Adam de Villiers, 2010a). All aerosol layers discussed in this section have a cloud-aerosol discrimination (CAD) greater than 90 %, which ensures that the detected layer by CALIOP contained aerosols (Eguchi et al., 2009).

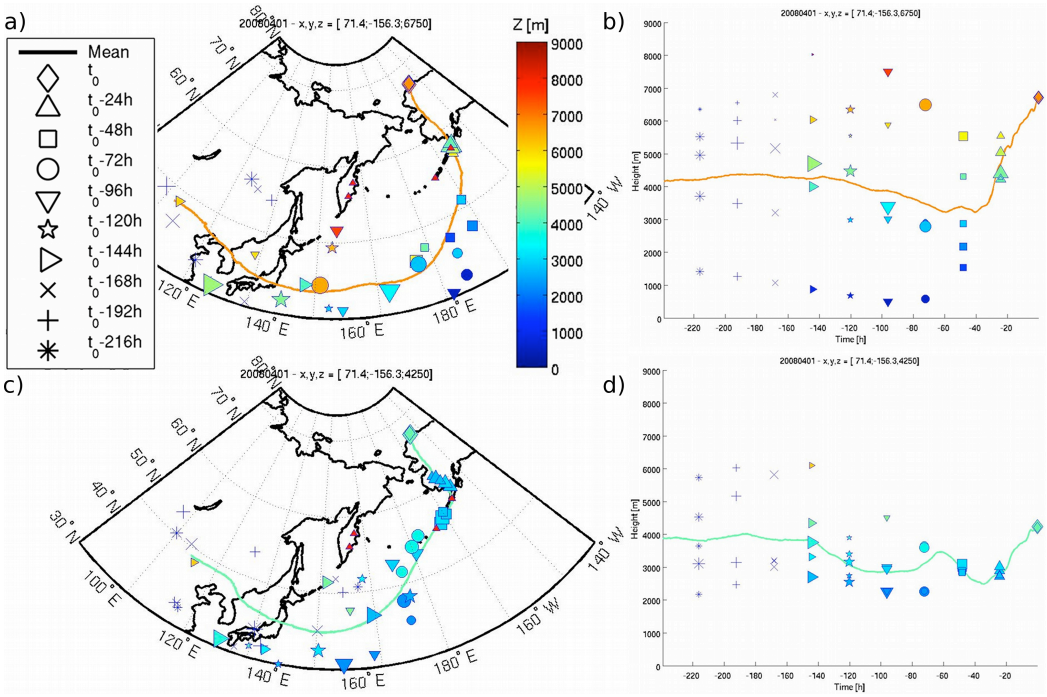

Figure 3.7 10-days backward-trajectories from FLEXPART simulations initialized on 1 April 2008 at 23:14:00 for boxes located at 71.4 °N, 156.3 °W at 6.75 km heigth [$B_{F9}1$] (a, b) and 4.25 km height [$B_{F9}2$]. Clusters of particles are represented every 24 hours from the beginning of the simulation. The colorbar represents the altitude of cluster in meters. Particles are released during one hour.

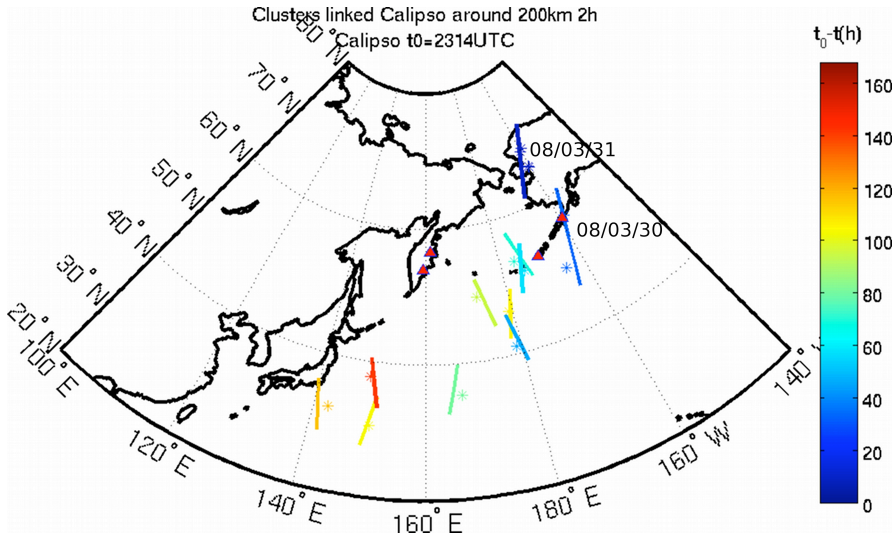

Figure 3.8 Calipso track sections (line) and FLEXPART air mass positions (∗) along FLEXPART trajectories initialized in the boxes $B_{F9}1$ and $B_{F9}2$ of Figures 3.7a and c. The color scale indicates the elapsed time in hours between the CALIPSO observation and the aircraft observation.

3.5.2 1 April 2008 – TIC-1/2A-F9 ice cloud

On the TIC-1/2A-F9 profile, the transport pathway for the ensemble of 2000 particles released for two boxes: $B_{F9}1$ and $B_{F9}2$ are shown in Figure 3.7. They are respectively characterized by their geographical coordinates in latitude, longitude and their altitude: $B_{F9}1$ (71.4 °N; 156.3 °W; 6.75 km) and $B_{F9}2$ (71.4 °N; 156.3 °W; 4.25 km). Air masses $B_{F9}1$ and $B_{F9}2$ originate 6 to 7 days before from eastern China/Siberia. They follow on average the tracks reports in Figures 3.7a, b and 3.7c, d respectively. This synoptic pattern corresponds to the period A.1 and is described in section 3.2, e.g. dominated by a direction of flow from the western North Pacific Ocean into Alaska. Throughout the pathway from eastern China/Siberia to the Aleutians, air masses stay at an altitude ranging from 3 to 4 km until the last day, before rising over Alaska in their northward track. According to Tu et al. (2004), SO_2 transported at altitudes of 2-4 km from East Asia dominated the SO_2 distribution in the central Pacific. In our case, SO_2 concentrations appear to be smaller over northern Pacific (180 °W and 40 to 60 °N) early April than later (see Figure 3.6). AMS data from the first two DC-8 ARCTAS flights (1 and 4 April 2008) were excluded due to apparent problems with the instrument (Fisher et al, 2011). Particles in the box $B_{F9}1$ more importantly rise (about 4 km) from

31 March to the observation time on 1 April at the top of the cloud around Barrow (see Figure 3.7b), than particles in the $B_{F9}2$ box, located 2.5 km below. This upward motion spreads over a large distance ahead of the warm front.

Observed air masses ($B_{F9}1$ and $B_{F9}2$) of the TIC-1/2A-F9 pass just above the volcanoes of the Aleutians on 30 March (see Figures 3.7 and 3.8). The daily volcano activity notifications of AVO reported weak volcanic tremor at Veniaminof at the end of March and a very weak thermal anomaly was detected at the summit of Cleveland on 30 March 2008. Air masses $B_{F9}1$ and $B_{F9}2$ intercept twice the CALIPSO/CloudSat track on 31 and 30 March 2008, respectively at 13:50:00 and 13:05:00 UTC (Figure 3.8). Figure 3.9 shows the vertical profiles of DARDAR masks of these two selected track sections. On 31 March 2008, air masses $B_{F9}1$ and $B_{F9}2$ were located at 68 °N just in front of an extended ice cloud (< 68 °N) and above a mixed-phase cloud (65-•72 °N) (Figure 9a). The slope of the ice cloud base between 64 and 68 °N is associated with the arrival of the warm front over northern Alaska. One day before (30 March 2008), $B_{F9}1$ air mass was located just in front of a high-level ice cloud (< 48 °N), whereas the $B_{F9}2$ air mass was located near the active Veniaminof volcano, in a cloudy area (identified $CL_{F9}1$ in Figure 3.9b). Mean values of T_a, β_{att}, Z, IWC, R_e and IWC/R_e retrieved from the Varcloud algorithm along the normalized height of the extended ice cloud $CL_{F9}1$ (56.3-56.7 °N) around the box $B_{F9}2$ are presented in Table 3.4. With similar temperatures and ice water contents on the first 2 km at the top of ice clouds, the averaged R_e of the $CL_{F9}1$ ice cloud is comparable to the averaged R_e of the TIC-1/2A-F9 ice cloud with a ratio IWC/R_e (index of ice crystals concentration) relatively high. $CL_{F9}1$ seems to belong to the category of TIC-1/2A with a high concentration of small ice crystals.

The CALIPSO/DARDAR mask independently reveals some aerosol layers near the $B_{F9}1$ and $B_{F9}2$ boxes between 65-74 °N (identified $AL_{F9}1$ in Figure 3.9a) in the mid-troposphere on 31 March and a wide aerosol layer (identified $AL_{F9}2$ in Figure 3.9b) over southern Aleutians volcanoes between 41-52 °N from 1 to 10 km in altitude on 30 March 2008. The mean attenuated backscatter coefficient at 532 nm (β_{att}), the mean volume depolarization ratio at 532 nm (δ_v) and the mean attenuated total color ratio (CR_{att}) for each aerosol layer are shown in Table 3.5. CALIPSO Level 2 aerosol layer data at 5 km resolution were used. The volume depolarization ratio (δ_v) in CALIOP products in aerosol layers is the ratio of the contributions in the backscattering direction of both molecules and particulates in a volume, of the cross-polarization to total signals. The attenuated total color ratio CR_{att} is derived from the attenuated backscatter ratio between 1064 nm and 532 nm. The relative variation in δ_v and CR_{att} go in the same

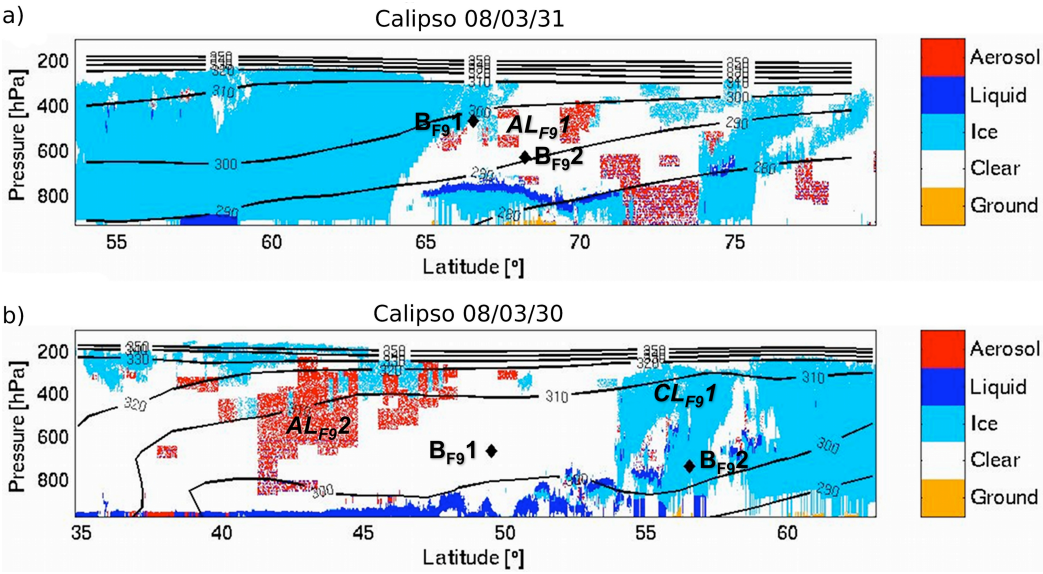

Figure 3.9 Dardar Mask track section observed on 31 March (a) at 13:50:00 UTC and on 30 March (b) at 13:05:00 UTC, 2008 from of the synergistic Cloudsat radar and CALIPSO lidar, with FLEXPART air masses ($B_{F9}1$ and $B_{F9}2$) positions (◇).

direction as that of the particulate color ratio between 1064 nm and 532 nm (CR_p) and the particulate depolarization ratio at 532 nm (δ_p), but with a lower amplitude with decreasing optical thickness and values of fractions of aerosol accumulation mode. The volume depolarization ratio, δ_v as the attenuated total color ratio, CR_{att}, have the advantage of being less unstable than particulate parameters (δ_p, CR_p) when studying thin aerosol layers, e.g. when the particular contribution is low (Adam de Villiers, 2010a). Uncertainties in δ_v and CR_{att} are estimated to be about 10 % and 30 %, respectively (Adam de Villiers, 2010a).

The volume depolarization ratio (δ_v) associated with CR_{att} can qualitatively inform on the nature of the aerosol. δ_v is sensitive to particle shape. Spherical aerosols (e.g., haze and aqueous smoke particles) produce little or no changes in the polarization state of backscattered light, whereas non-spherical particles like dust or volcanic ashes can generate considerable depolarization (Mishchenko and Sassen, 1998; Atkinson et al., 2011). The relative increase in CR_{att} is related to the increase in particle size. An increase of δ_v with particulate age during transport can occur as the aerosol loses its moisture coating, exposing the irregular aerosol surface (Sassen et al., 1989). Inversely, a decrease in δ_v associated to an increase in CR_{att} with particulate age during their

Table 3.5 Aerosol layer characteristics defined in previous Figures from the CALIOP lidar observations.

Aerosol Layer	$AL_{F9}1$	$AL_{F9}2$	$AL_{F21}1$	$AL_{F21}2$	$AL_{F21}3$	$AL_{F21}4$
Date m/d	08/03/31	08/03/30	08/04/12	08/04/12	08/04/10	08/04/10
Time UTC	13:49-14:29	13:11-13:40	14:19-14:48	14:18-14:48	12:53-13:21	12:51-13:23
Start Lat/ Lon °	65.0/-163.8	41.3/174.4	44.5/178.7	62.0/-178.3	42.2/-160.4	52.0/-156.1
End Lat/ Lon °	71.0/-156.7	51.3/170.7	51.0/-178.7	69.2/-165.3	52.0/-156.6	59.0/-152.9
Z_{min}-Z_{max} km	2.3-7.3	1-11	1.4-8.7	1.4-7	2-7.5	2.5-8.5
$\beta_{532,att}$ $Mm^{-1}.sr^{-1}$	1.4±0.3	1.3±0.4	1.7±0.5	1.7±0.4	1.5±0.3	1.5±0.3
CR_{att}	0.23±0.38	0.26±0.23	0.31±0.21	0.24±0.17	0.27±0.17	0.24±0.15
δ_v %	4±4	7±4	5±3	3±3	5±3	4±3
CFC	C.C	D	P.D	C.C	P.D	P.D
$\beta_{532,p,t}$ $Mm^{-1}.sr^{-1}$	-	0.52±0.29	0.50±0.30	-	0.61±0.18	0.65±0.28
$\beta_{532,p,1}$= Dust	-	0.32±0.17	0.27±0.18	-	0.18±0.07	0.15±0.09
$\beta_{532,p,2}$= Pollutant	-	0.21±0.25	0.24±0.24	-	0.43±0.17	0.50±0.27
$\alpha_{p,t}$ $10^{-2}km^{-1}$	2.3±1.2	2.1±1.2	2.3±1.4	2.4±1.2	3.4±1.0	3.8±2.0
$\delta_{p,t}$ %	16±13	24±10	23±15	10±5	13±4	12±7
RH_{water} %	49.7±15.8	29.8±18.5	59.0±17.5	46.0±24.9	38.0±18.2	34.1±14.2

transport can occur as the aerosol is coated with hydrophilic material and turned into such condensation nuclei causing sphering of the aerosol.

For both aerosol layers $AL_{F9}2$ and $AL_{F9}1$; β_{att} and CR_{att} do not vary much between 30 to 31 March 2008, with values of the order of β_{att} = 1.3-1.4 Mm^{-1}.sr^{-1} and CR_{att} = 0.26-0.23, respectively, while δ_v decreased more steeply from 7 to 4 % (Table 3.5).

Following Liu et al. (2009), one can broadly characterize each of CALIOP individual aerosol layers as «dust» when the volume depolarization ration (δ_v) is greater than 6 % or as «non-dust» aerosol otherwise. The differences observed here remain small

however, and this differentiation may be difficult. However, the back-trajectory analysis (Figures 3.7a,b) associated to the higher value of the depolarization ratio (∼7 %) (Table 3.5) of the $AL_{F9}2$ aerosols layer on 30 March 2008 suggest that the aerosol layer is composed of dust coming from dry regions of China and Mongolia (Gobi desert) probably mixed with anthropogenic pollution over Eastern China (AE). To a lesser extent some of the particles were previously in the area of biomass burning smoke (BBE) according to synoptic pattern in Figure 3.3a. Tesche et al. (2009) and Giannakaki et al. (2012)´s approaches were used to separate mineral dust and non-dust (considered as anthropogenic particles) contributions based on CALIOP lidar observations. CALIPSO Level 2 aerosol profile data at 5 km resolution were used. Assuming that aerosols can be treated as two aerosol types externally mixed the particulate backscatter contribution of the first aerosol type ($\beta_{p,1}$) is obtained from the measured total particulate backscatter coefficient ($\beta_{p,t}$) by the following equation:

$$\beta_{p,1} = \beta_{p,t} \frac{(\delta_{p,t} - \delta_{p,2})(1 + \delta_{p,1})}{(\delta_{p,1} - \delta_{p,2})(1 + \delta_{p,t})} \tag{3.1}$$

where $\delta_{p,t}$, $\delta_{p,1}$ and $\delta_{p,2}$ are the observed total particulate depolarization ratio and the assumed particulate depolarization ratios of the two pure aerosol types, respectively. The backscatter coefficient of the second aerosol type is given by the following equation

$$\beta_{p,2} = \beta_{p,t} - \beta_{p,1} \tag{3.2}$$

The separation procedure, Eq. 3.2, was applied with dust aerosol representing aerosol type 1 and anthropogenic aerosol (or non-dust aerosol) representing aerosol type 2. A value $\delta_{p,1} = 0.35$ was considered for particulate depolarization ratio at 532 nm of Asian dust (Sugimoto et al., 2003; Shimizu et al., 2004). Non-dust particulate depolarization ratios $\delta_{p,2}$ can vary from 0.02 to 0.15 with an accumulation around 0.05 (Sugimoto et al., 2003; Tesche et al., 2009). The value $\delta_{p,2} = 0.05$ was considered for the aerosol type 2, as we suppose that transport over the ocean may induce larger moistening. Figure 3.10 shows the total particulate backscatter ($\beta_{p,t}$) and particulate extinction coefficient ($\alpha_{p,t}$) at 532 and 1064 nm, the total particulate depolarization ratio at 532 nm ($\delta_{p,t}$) and the profiles of the dust (yellow) and anthropogenic (red) backscatter coefficient separated by this analysis with the CALIOP scene classification algorithm of the aerosols layer $AL_{F9}2$. The separation procedure has revealed that the lower layer (< 3 km altitude), with a lower particulate depolarization ratio, is mixed while the middle and upper layer are consisting mainly in dust particles (Figure 3.10d). CALIOP scene classification

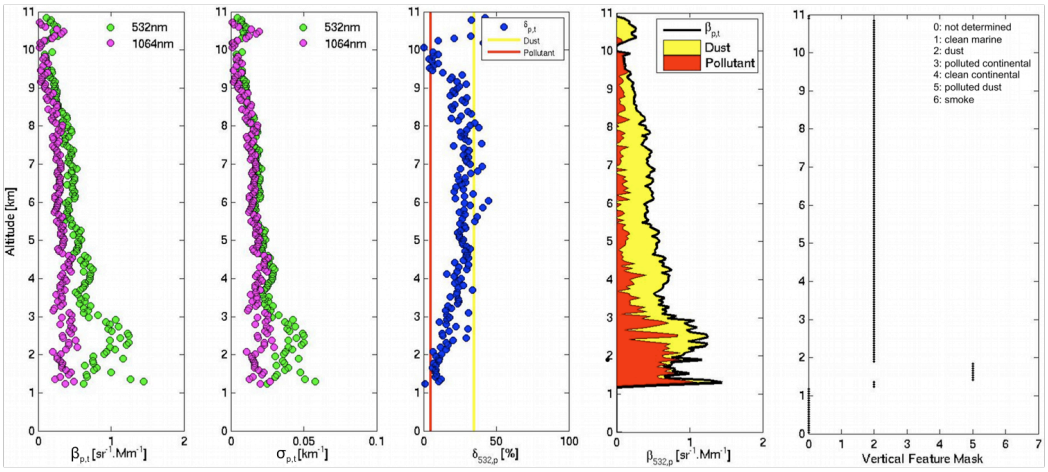

Figure 3.10 (a) Total particulate backscatter coefficient at 532 nm (green) and 1064 nm (magenta); (b) particulate extinction coefficient at 532 nm (green) and 1064 nm (magenta); (c) Total particulate depolarization ratio at 532 nm (green) and the input values of dust (yellow) and anthropogenic (red) particles, (d) Separation of dust (yellow) and anthropogenic (red) particulate backscatter coefficients at 532 nm and (e) Vertical Feature Mask as given by CALIPSO from aerosols layer ($AL_{F9}2$) indicated in Figure 3.9.

algorithm classifies a thin aerosol layer (1-2 km altitude) as polluted dust and the middle and upper aerosol layer as dust (Figure 3.10e). Polluted dust is designed to account for episodes of dust mixed with biomass burning smoke and/or anthropogenic pollution, which is consistent with the results. The following aerosol layer $AL_{F9}1$, on 31 March, has a value CR_{att} ~0.23 and a value $\delta_v < 6$ %. CALIOP scene classification algorithm classifies the aerosol layer $AL_{F9}1$ as clean continental (Table 3.5). Adam de Villiers (2010a) note that the CALIOP scene classification tends to define layers encountered after several days of transport as clean continental in the Arctic, while their analysis shows a connection with the Asian polluted sources. The decrease in δ_v associated to the slight decrease in CR_{att} between $AL_{F9}2$ in 30 March and $AL_{F9}1$ in 31 March can occur with the removal of the large particles by wet deposition just after the warm front at the time of cloud dissipation of clouds (Figure 3.9a) (Bègue et al., 2012). The relative humidity with respect to water (RH_{Water}) inside the $AL_{F9}2$ (~29.8 %) was drier than $AL_{F9}1$ (~49.7 %) (Table 3.5), thus supporting this hypothesis.

These results show that air masses observed within the upper part of the TIC-1/2A-F9 ice cloud were mainly influenced by pure dust from dry regions of China and Mon-

golia with some mixture of anthropogenic pollution (AE) and possible biomass burning smoke (BBE). With a large proportion of desert dust compared to anthropogenic aerosols, added to a low activity of volcanoes from Kamchatka/Aleutians (Figure 3.6a), air masses forming the TIC-1/2A-F9 can be classified as not acidic. Based on synoptic meteorological analysis, air mass back trajectory studies using the FLEXPART model with surface lidar and balloon-borne aerosol measurements at the Fairbanks site, Atkinson et al. (2011) have shown that the first few days of April (1 April to midday 5 April 2008) were dominated by pristine clear conditions with a very low aerosol concentration. This is consistent with our findings.

3.5.3 15 April 2008 – TIC-2B-F21 ice cloud

On 15 April 2008 (TIC-2B-F21), the transport pathway for the ensemble of 2000 particles released for three boxes located at 6.75 km (hereafter $B_{F9}1$), 5.75 km (hereafter $B_{F9}2$) and 4.25 km (hereafter $B_{F9}3$) located as before over Barrow (71.5 °N; 156.6 °W) are shown in Figure 3.11. Air masses forming the TIC-2B-F21 come from the Far Eastern Russia (Figure 3.11a – $B_{F9}1$) and mainly from the Aleutians in a direct ($B_{F9}2$ in Figures 3.11b) or a long transport path ($B_{F9}3$ in Figure 3.11e). Due to the low-pressure system over Alaska, the air masses stay several days in the same area between 140 °E - 140 °W and 45-75 °N the 7 days prior to the observations. The $B_{F9}1$ air mass remains at high altitude (> 6 km) throughout its pathway, in a region (Far Eastern Russia) relatively clean according to the OMI observations. The $B_{F9}2$ air mass comes directly from the Aleutians with an upward motion from the PBL (altitude < 2 km) above the North Pacific Ocean 4 days before (on 12 April 2008) at 175 °E longitude and 50 °N latitude (see Figure 3.11d), to ∼5.75 km above the Bering Sea (3 days before) and the NSA (1-2 days before) (Figure 3.11c). $B_{F9}3$ air mass comes also from the Aleutians. It bypasses the low depression centered on Alaska, then passes over Western Canada and comes back to Barrow with a northwest component. There is a significant upward motion from the PBL (altitude < 3 km) to 4 km height above the Northwest Territories (2-3 days before) and the Beaufort Sea (1 day before) (see Figure 3.11f). The OMI total SO_2 columns density at 5 km from 10 to 16 April 2008 (see Figure 3.6c) show that the studied $B_{F9}2$ and $B_{F9}3$ air masses passed through heavily SO_2 (> 1.5 DU) polluted regions. Based on seismic and satellite data, the KVERT reported that weak ash-and-gas explosions may have occurred daily from the 10 to 14 April 2008 at Karymsky and Shiveluch (Kamchatka). $B_{F9}2$ and $B_{F9}3$ air masses are staying at low altitudes when passing over, and moving away from the Aleutian islands.

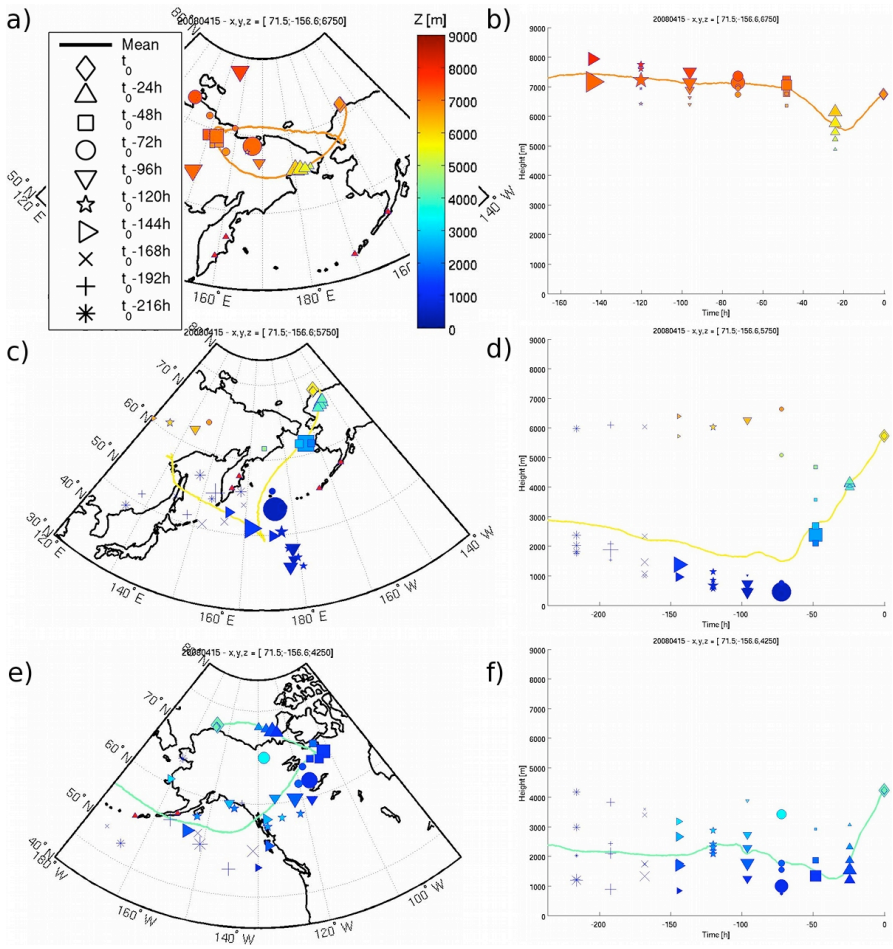

Figure 3.11 10-days backward-trajectories from FLEXPART simulations initialized on 15 April 2008 at 01:16:00 UTC for boxes located at 71.5 °N; 156.6 °W at (a.b) 6.75 km in heigth [$B_{F21}1$]; (c.d) 5.75 km heigth [$B_{F21}2$] and (e.f) 4.25 km heigth [$B_{F21}3$]. Clusters of particles are represented every 24 hours from the beginning of the simulation. The colorbar represents the altitude of cluster in meters. Particles are released during one hour.

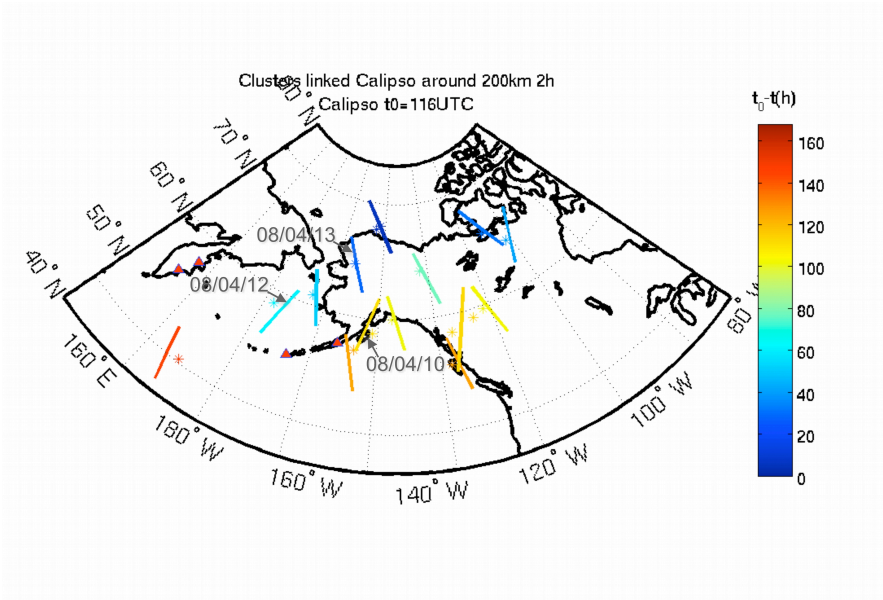

Figure 3.12 Calipso track sections (line) and FLEXPART air mass positions (∗) along FLEXPART trajectories initialized in the box $B_{F21}2$ of Figure 3.11c (left of the dashed line) and initialized in the box $B_{F21}3$ of Figure 3.11e (rigth of the dashed line). The color scale indicates the elapsed time in hours between the CALIPSO observation and the aircraft observation.

The back-trajectory of the $B_{F9}2$ air mass is further examined to identify the intercepts with CALIPSO and look at other ice clouds with DARDAR. The trajectory of this air mass crosses three times the CALIPSO satellite tracks in the three days preceding the observations (see Figure 3.12). Figure 3.13a and b shows the vertical profiles of cloud properties retrieved by DARDAR of the track sections on 13 and 12 April 2008, respectively at 23:01:00 and 14:18:00 UTC. On 13 April 2008, $B_{F9}2$ air mass was located at 67 °N inside an extended ice cloud between 58 and 72 °N (identified as $CL_{F21}1$). On 12 April 2008, $B_{F9}2$ air mass was located further south at 58.5 °N inside a second extended ice cloud between 50 and 63 °N (identified as $CL_{F21}2$). Table 3.4 shows the mean values of T_a, β_{att}, Z, IWC, R_e and IWC/R_e along normalized height of extended ice cloud $CL_{F21}1$ (66.5-67.0 °N) and $CL_{F21}2$ (58.0-58.5 °N), around the $B_{F9}2$ box. For both extended ice cloud layers $CL_{F21}1$ and $CL_{F21}2$, the ratio IWC/R_e on the first 2 km at the top of ice clouds is as low as the TIC-2B-F21 ice clouds for an averaged R_e also relatively high. $CL_{F21}1$ and $CL_{F21}2$ belong to the category of TIC-2B with a low concentration of large ice crystals.

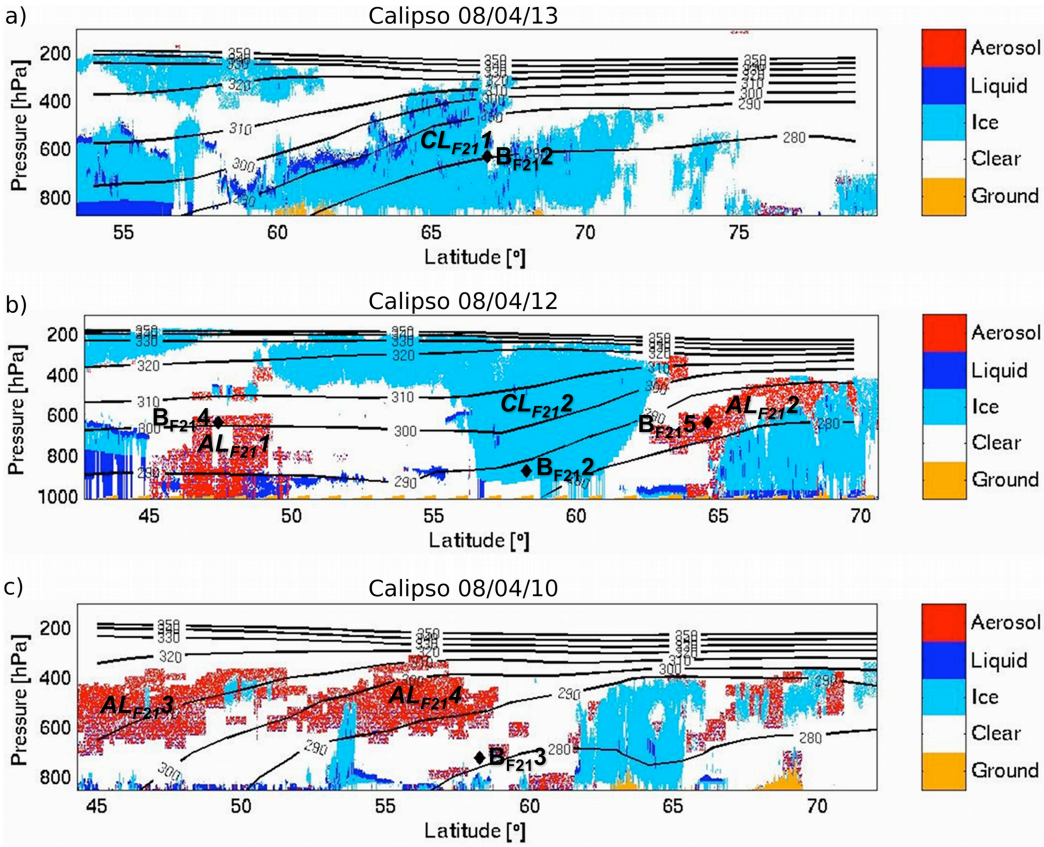

Figure 3.13 Dardar Mask track section observed on 13 April (a) at 23:01:00 UTC, on 12 April (b) at 14:18:00 UTC that intercept the FLEXPART air masses ($B_{F21}2$) in positions ($\diamond$), and on 10 April at 13:00:00 UTC that intercept the FLEXPART air masses ($B_{F21}3$) in positions ($\diamond$).

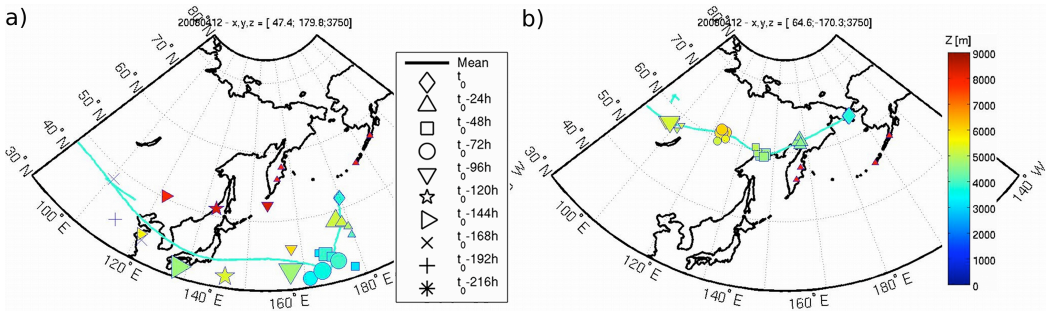

Figure 3.14 10-days backward-trajectories from FLEXPART simulations initialized on 12 April 2008 at 14:18:00 UTC for boxes $B_{F9}4$ located at 47.4 °N; 179.8 °W at 3.75 km in heigth (a) and $B_{F9}5$ located at 64.6 °N; -170.3 °W at 3.75 km in heigth (b). Clusters of particles are represented every 24 hours from the beginning of the simulation. The colorbar represents the altitude of cluster in meters. Particles are released during one hour.

The CALIOP/DARDAR mask also reveals aerosol layers on either side of the ice cloud $CL_{F21}2$, between 44-51 °N above the North Pacific Ocean ($AL_{F21}1$) and between 62-70 °N just above the Bering Sea ($AL_{F21}2$) on 12 April 2008 (Figure 3.13b). $AL_{F21}1$ layer have low values of β_{att} and CR_{att} of about 1.7 Mm^{-1}.sr-1 and 0.31 with a volume depolarization ratio δ_v of about 5±3 % (Table 3.5). CALIOP scene classification algorithm classifies the $AL_{F21}1$ layer as polluted dust (Table 3.5). A 10-day back-trajectory analysis (Figure 3.14a) of one air mass box ($B_{F9}4$) in the $AL_{F21}1$ layer (47.4 °N; 179.8 °E; 3.75 km in Figure 3.13b) reveals that the air mass come from dry regions of Gobi desert probably mixed with anthropogenic pollution over Eastern China (AE) without passing by the BBE domain. The analysis in terms of partitioning between dust and non-dust as done previously shows that dust contributes to around 50 % of scattering in the signal above 1 km (Figure 3.15a and Table 3.5). The other aerosol layers $AL_{F21}2$ have lower δ_v (3±3 %) and are classified as a continental clean air mass (Table 3.5). A 10-day back-trajectory analysis (Figure 3.14b) of an air mass box ($B_{F9}5$) inside the $AL_{F21}2$ layer (64.6 °N; 170.3 °W; 3.75 km in Figure 3.13b) reveal a contribution of biomass burning smoke.

The analysis in term of the aerosol layer lidar properties that intercept the $B_{F9}3$ air mass back-trajectory (Figures 3.11e and 3.12) with CALIPSO reveals that aerosol layers along the $B_{F9}3$ (eastern part of Alaska) and $B_{F9}2$ (western part of Alaska) air mass back-trajectories seem to be relatively of the same composition. For example, the CALIPSO track section that intercepts the $B_{F9}3$ air mass back-trajectory on 10 April 2008 at

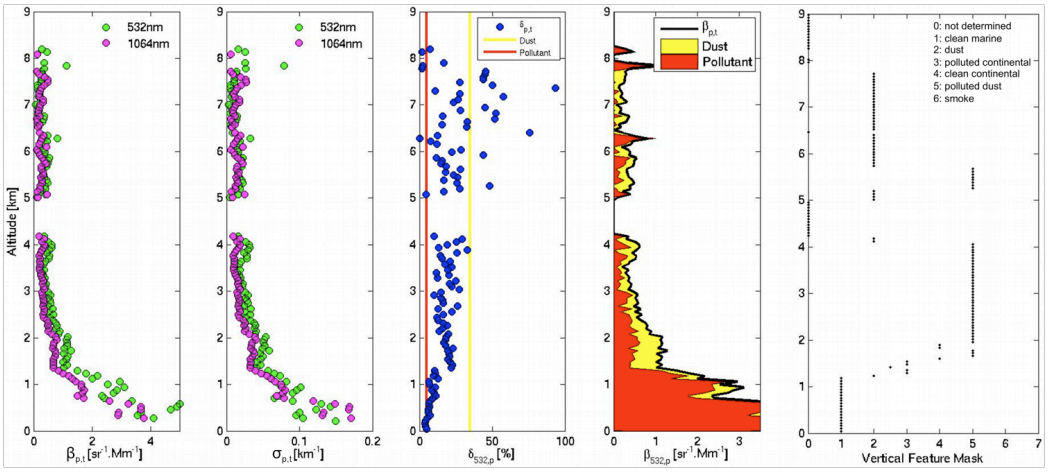

Figure 3.15 (a) Total backscatter coefficient at 532 nm (green) and 1064 nm (magenta); (b) Particulate extinction coefficient at 532 nm (green) and 1064 nm (magenta); (c) Total particulate depolarization ratio at 532 nm (green) and the input values of dust (yellow) and anthropogenic (red) particles, (d) Separation of dust (yellow) and anthropogenic (red) backscatter coefficients at 532 nm and (e) Vertical Feature Mask as given by CALIPSO from aerosols layer ($AL_{F21}1$) indicated in Figure 3.13.

∼13:00:00 UTC (Figure 3.12), reveals two aerosol layers between 44-60 °N ($AL_{F21}3$ and $AL_{F21}4$ – Figure 3.13c) above the Gulf of Alaska (Figure 3.12). The analysis, in terms of partitioning between dust and non-dust as done previously shows a major (larger than 70 %) contribution of anthropogenic and/or biomass burning smoke scattering in the signal ($AL_{F21}3$ and $AL_{F21}4$) (Table 3.5).

Air masses observed in Alaska on 15 April 2008 appear to be influenced by a mixture of Asian dust (with a proportion of 50 % of anthropogenic pollution) and/or biomass burning smoke (BBE) (with a proportion of 70 % of smoke). No signature of fresh volcanic ash (e.g. higher values of δ_v due to the proximity) was found in the CALIOP data along back-trajectories of $B_{F9}2$ and $B_{F9}3$ air masses forming the TIC-2B-F21. Atkinson et al. (2011) show that, at the Fairbanks site, the second week of April (midday 5 to 17 April 2008) was dominated by Asian dust with some smoke probably resulting from a flow from northern China and south-eastern Siberia, maintained by the presence of an anticyclone in the central north Pacific.

On 1 April 2008 Asian dust and biomass burning smoke follow a direction flow from the western North Pacific Ocean (Figure 3.3a, Figure 3.7a and c) to Alaska, providing

opportunity to aerosol loss by wet deposition into the marine convective boundary layer (Tu et al., 2004; Atkinson et al., 2011). The synoptic pattern on 15 April 2008 promotes biomass burning smoke intrusion into Alaska following a fairly direct pathway from eastern Siberia to Alaska along the coast of Siberia/Kamchatka, the time spent over the ocean is significantly shorter (Figure 3.3c and 3.14c). In addition, the decaying low-pressure system centered into Alaska brings westerly air masses (Asian dust + burning biomass smoke) into Alaska (Figure 3.11e) during several days (Figure 3.3c). Asian dust contribution as observed from the lidar signal analysis appears comparable in both cases, but the synoptic pattern observed in period B is favorable to the accumulation of pollutants from eastern China/Siberia into Alaska and may explain the higher accumulation of SO_2 concentrations above Alaska during the TIC-2B-F21 period compared to the TIC-1/2A-F9 period observed from the OMI data (Figure 3.6a and c).

3.6 Discussion

OMI provides a unique perspective on variability of transport of SO_2 to the Arctic and can be used to identify long-range pollution tracks to the Arctic using FLEXPART forward trajectories as shown in previous section. Figure 3.16 shows another example of the transport and dispersion of high concentrations of anthropogenic pollution emitted from Beijing around 22 up ti the 26 March 2008. On 23 March polluted air masses moved along the east coast of Siberia. Then they crossed and spread over the Okhotsk Sea on 24 March to the south of the volcanic arc of the Aleutians/Kamchatka on 25 and 26 March. Figure 3.16b shows a 7-day forward trajectory initialized on 22 March at 12:00:00 UTC over Beijing in mid-troposphere at 7500 m altitude. There is a qualitatively good agreement between measured OMI total column density of SO_2 and FLEXPART simulated forward trajectories, in the mid-troposphere from 22 to 26 March 2008. Forward trajectories from the sampled plume indicate that the plume did not travel poleward but rather to the west coast of USA.

Trajectory study with OMI satellite observations allow the identification of three favorable periods for the transport of air masses from northeastern China, southeastern Siberia and Kamchatka/Aleutians into Alaska during the ISDAC campaign: there are periods A.1 (27 March-2 April), B.1 (10-16 April) and B.2 (17-25 April). SO_2 OMI measurements showed that air masses reaching Alaska on 10 April 2008 until the end of the month (period B) seem more polluted (by a factor of 3 in SO_2 content) than during period A (27 March - 9 April 2008). Nevertheless, most of the time, air masses

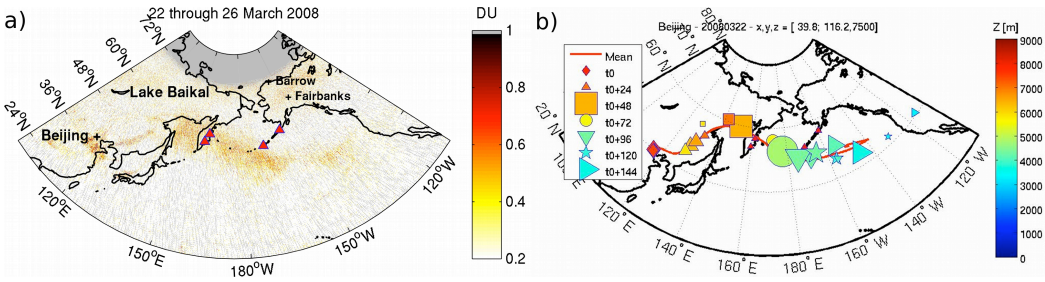

Figure 3.16 Average total column density SO_2 from 22 to 26 March 2008 from Level 2G daily gridded (0.125 x 0.125 °) OMI SO_2 products in the mid-troposphere (a) and 7-days forward trajectories from FLEXPART simulations initialized the 22 March 2008 at 12:00:00 UTC from Beijing in mid-tropophere. Clusters of particles are represented every 24 hours from the beginning of the simulation. The color bar represents the altitude of cluster in meters. Particles are released during one hour.

coming from northeastern China and/or southeastern Siberia follow the same path and pass over the volcano area. For this reason, it becomes difficult to discriminate the SO_2 pollution sources. Polluted air masses from the northeastern China Anthropogenic Emission (AE) and the southeastern Siberia Biomass Burning Emission (BBE) are quite far from Alaska and have time to disperse over a large area. Figure 3.16 illustrates this phenomenon with a high concentration of SO_2 from AE and BBE sources that eventually disperse and lose in concentration along its path eastward. Moreover, several factors can change the OMI SO_2 signal: chemical reaction and dry deposition of SO_2 can reduce the signal; lofting of the plume (change of SO_2 vertical distribution) can enhance the signal; clouds can add to the OMI sensitivity to SO_2 above them but block SO_2 beneath. The overall result for this case, and very likely for other transport events in the lower troposphere, is that part of the SO_2 plume that can be detected over the source region would become less visible to OMI over downwind areas (Li et al, 2010).

Zhang et al. (2004) investigated the transport and chemical transformation of sulfur compounds over East Asia during the winter-spring season of 2001 using chemical and atmospheric models. Results have shown that the SO_2 and SO_4^{2-} concentrations show pronounced variations in time and space due to the interplay of chemical conversion, removal and transport processes. Analysis of model results has shown that the emission was the dominant term in regulating the SO_2 spatial distribution, while conversion of SO_2 to SO_4^{2-} in the gas phase and the aqueous phase and wet removal were the primary factors that control SO_4^{2-} amounts. Simulations showed that 42 % sulfur compounds emitted in the model domain was transported out, while about 57 % (∼35 % by wet

removal processes) was deposited in the domain during the study period. It is thus difficult to quantify the change of the total SO_2 mass within the plume during transport, with OMI retrievals alone (Li et al, 2010).

Extensive chemical measurements from two airborne field experiments conducted in April 2008 over the North American Arctic (ARCTAS-A (Jacob et al., 2010) and ARCPAC (Brock et al., 2011)) as well as surface seasonal observations at Arctic sites were performed during the International Polar Year (IPY). These measurements, combined with transport and coupled transport-chemistry models, provided unprecedented information on the sources of aerosols, including sulphate with their vertical distribution and confirm that the sulphate concentration over the NAA during the winter-spring 2008 period was related to a diversity of anthropogenic and natural sources (Brock et al., 2011; Fisher et al., 2011; Harrigan et al., 2011; Warneke et al., 2009, 2010). Air masses forming the TIC-1/2A-F9 as found in this study were composed of a high proportion of pure dust from dry regions of China and Mongolia with a low contribution of anthropogenic/smoke pollutants and SO_2, suggesting the absence of highly acidic ice nuclei. The air masses forming the TIC-2B-F21 as found in this study were composed of well mixed polluted dust with a relatively high contribution of anthropogenic/smoke pollutants (more than 70 %) and SO_2.

The level of acidity of the aerosols forming the TIC-2B-F21 ice cloud can been determined using in-situ measurements taken during the ARCPAC/ARCTAS Campaign and by examining the thermodynamic properties of the aerosol layer. The ARCPAC/ARCTAS projects overlapped in space and time with the Convair 580 aircraft from the ISDAC Campaign. The NASA ARCTAS P-3B and the NOAA ARCPAC WP-3D aircrafts sampled the aerosol acidity near Barrow, on 15 April 2008, respectively, between 22:21:00-01:17:00 UTC and 00:25:00-02:12:00 UTC. An Aerosol Mass Spectrometer (AMS) (Dunlea et al., 2009) measuring submicron aerosol mass and composition as a function of their size was used. These data are also within the precision of the ARCPAC AMS measurement (35 %). The observed aerosol acidity was defined by the mean neutralized fraction as $f = [NH_4^+]/(2([SO_4^{2-}]+[NO_3^-]))$ with all concentrations in molar units (Fisher et al., 2011). On 15 April 2008, the average observed aerosol acidity in the area ± 3 ° latitude and longitude coordinates around Barrow and above 2 km altitude gives low values of the order of 0.33 ± 0.15 (P-3B) and 0.46 ± 0.13 (WP-3D), indicating the presence of highly acidic aerosols.

As explained previously, an increase of δ_v with particulate age during transport can oc-

cur as the aerosol loses its coating, exposing the irregular aerosol surface (Sassen et al., 1989). This is possible if an aerosol composed of ammonium sulfate crosses a dry area with a RH_{Water} below its efflorescence point (∼37 %). However, if the aerosol is coated with highly acidic conpound such as sulfuric acid, which is highly hygroscopic, it will not lose its moisture coating even at very low RH_{Water}. In this situation, δ_v should remain unchanged. According to the results, aerosols layers ($AL_{F21}2$, $AL_{F21}3$ and $AL_{F21}4$) forming the TIC-2B are composed of a mixture of dust with anthropogenic and smoke pollutants and SO_2. One aerosol layer to the other, the δ_v remains unchanged (4-5 %) while CR_{att} and RH_{Water} decrease from 0.31 to 0.24 and 50 to 34.1 %, respectively, below the efflorescence point of sulfate ammonium (Table 3.5). These results support the idea that air masses forming the TIC-2B-F21 were composed of acid-coated aerosols. Although no signature of volcanic ash was found in the CALIOP data, the contribution of volcanoes to the SO_2 accumulation in Alaska during period B is a reasonable hypothesis given the reported volcanic activities by KVERT.

3.7 Summary and Conclusion

In this work, the temporal variability of Alaska-averaged SO_2 pollution from OMI satellite data, associated to the meteorological conditions during March-April 2008, was presented. Preliminary estimates of the SO_2 column amount were calculated based on an assumed SO_2 altitude of 5-10 km above Alaska. Two periods have been distinguished; a relatively clean period (very little SO_2 concentration) from 27 March to 3 April 2008, and a more polluted period from the 10 to 25 April 2008 with a concentration of OMI SO_2 3 times higher than during the first period. Together with trajectory tools and OMI satellite data, the origins and the transport pathways of the SO_2 were identified during April 2008. The SO_2 emitted from the northeastern China Anthropogenic Emission and from the southeastern Siberia Biomass Burning Emission sources were generally transported to Alaska, passing over the Kamchatka/Aleutians volcanoes, in 5-7 days throughout the month of April. All of the three identified SO_2 pollution sources seem to have a direct influence on the SO_2 concentration into the North Slope of Alaska. The SO_2 distributions during the long-range transport were determined primarily by the atmospheric dynamics.

The origin of the air masses in which the ISDAC TIC-1/2A (1 April 2008) and TIC-2B (15 April 2008) were formed, was investigated to verify the hypothesis regarding the potential link between acidic aerosols and TIC-2B. Results are discussed by examining

the CALIPSO satellite tracks, which intersects the back trajectories in the region away from the airborne measurements. Air masses observed within the upper part of the TIC-1/2A-F9 ice cloud were mainly influenced by a mixture of Asian dust with AE and possible BBE emissions. The separation procedure has revealed an aerosol layer (2 days before the ISDAC observations) slightly mixed with a higher proportion of pure dust aerosols. Added to a low activity of volcanoes from Kamchatka/Aleutians during this reported period, air masses forming the TIC-1/2A-F9 does not appear acidic. Air masses observed within the upper part of the TIC-2B-F21 ice cloud appear to be mainly influenced by an accumulation (due to specific weather conditions) of a mixture of Asian dust with BBE and possible VE emissions (due to important daily volcano activity, according to the KVERT report) into Alaska. The separation procedure has revealed aerosol layers (3 days before the ISDAC observations) well mixed with a higher proportion of anthropogenic and smoke aerosols. Airborne measurements revealed that aerosols were acidic around Barrow, near the sample ISDAC TIC-2B, on 15 April 2008. The thermodynamic properties associated to the CALIOP volume depolarization ratio also indicate that aerosols were highly acidic during the TIC-2B period.

These results and the analysis of aerosol moistening support the hypothesis that acidic coating on IN could be at the origin of the formation of TIC-2B. However, other studies are needed to confirm this hypothesis, in particular dedicated campaigns to investigate the link between acid-coated aerosols and TIC-2B clouds. The ice crystal growth rate in very cold conditions impinges on the precipitation efficiency, dehydration and radiation balance. A regional climate model evaluating the impact of the IN de-activation effect by acid coating on the cloud microstructure, precipitation and radiation have also been performed by Girard et al. (2012). Results show that acid coating on dust particles has an important effect on cloud microstructure, atmospheric dehydration, radiation and temperature over the Central Arctic, which is the coldest part of the Arctic.

CHAPITRE IV

ZONES ARCTIQUES PROPICES À LA FORMATION DES NUAGES DE GLACE DE TYPE TIC-2B

4.1 Introduction

L'ensemble des résultats obtenus au cours de ce projet de recherche, ont ainsi permis d'identifier les conditions à réunir afin d'observer potentiellement un effet des particules minérales acidifiés sur la formation des nuages de glace de type TIC-2B en avril 2008 au-dessus de Barrow. Les conditions favorables sont les suivantes:

- Un patron synoptique favorisant le soulèvement et le mélange interne (i.e. les particules de différentes familles sont en interaction physico-chimique entre elles) de particules minérales acidifiés dans la haute troposphère en amont de la formation du TIC-2B.

- Des températures basses comprises entre -30 et -40 °C dans la portion supérieure du nuage de glace.

- Une humidité relative par rapport à la glace proche de la saturation par rapport à l'eau liquide (> 120 %) au sommet du nuage de glace.

- Une situation synoptique locale favorisant le maintien d'un S_{Ice} élevé, c'est-à-dire un lent refroidissement permettant un équilibre entre le taux de production et le taux de condensation.

Les sections 4.2 et 4.3 présentent la distribution spatiale et temporelle des aérosols ainsi que l'état thermodynamique de l'atmosphère arctique afin d'évaluer l'ampleur du phénomène.

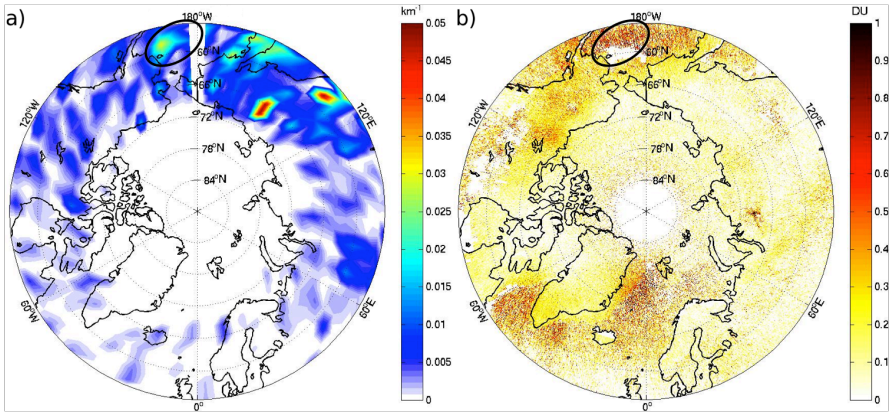

Figure 4.1 Distribution spatiale des profils de nuit (combinées: cloud free + above cloud) d'extinction des aérosols moyennés entre 5 et 8 km d'altitude à l'aide des données CALIOP de niveau 3 (a), Distribution spatiale de la colonne totale de SO_2 basée sur une altitude présumée entre 5 et 10 km d'altitude (TRM OMI L2G SO_2 products) (b), moyennée sur le mois d'avril 2008 au-dessus de l'Arctique.

4.2 Distribution spatiale et temporelle des aérosols vus par le satellite CALIPSO

Compte tenu des hypothèses formulées, nous allons rechercher les occurrences dans la zone d'altitude de la moyenne et haute troposphère. La distribution spatiale des profils d'extinction des aérosols des produits de niveau 3 de CALIOP moyennées entre 5 et 8 km d'altitude pour le mois d'avril 2008 au-dessus de l'Arctique (Figure 4.1a) révèle des valeurs maximales au-dessus de l'est de la Russie, de l'Alaska et au nord du Canada. Les observations satellitaires d'OMI montrent également de fortes valeurs de SO_2 dans la mi-troposphère dans cette région (Figure 4.1b), indiquant, avec une grande probabilité, une acidification des aérosols, plus particulièrement dans la zone du sud du détroit de Béring (Cercles noirs Figure 4.1). La Figure 4.2 présente la distribution spatiale des profils d'extinction moyen des aérosols par saison (DJF 2007-2008; MAM 2008; SON 2008) et altitude (Basse troposphère 0-2 km; Moyenne troposphère 2-5 km et Haute troposphère 5-8 km). On constate une pollution plus intense dans la basse troposphère en hiver avec un flux de pollution autour de l'anticyclone sibérien et des aérosols de type sel marin dans l'Atlantique Nord. Au printemps 2008, l'augmentation du transport des aérosols des latitudes moyennes entraîne des valeurs maximales d'extinction des aérosols dans la moyenne et haute troposphère au-dessus de l'est de la Russie et de l'Alaska. En hiver comme en automne, la haute troposphère arctique (5-8 km altitude) semble relativement propre, dépourvue d'aérosols.

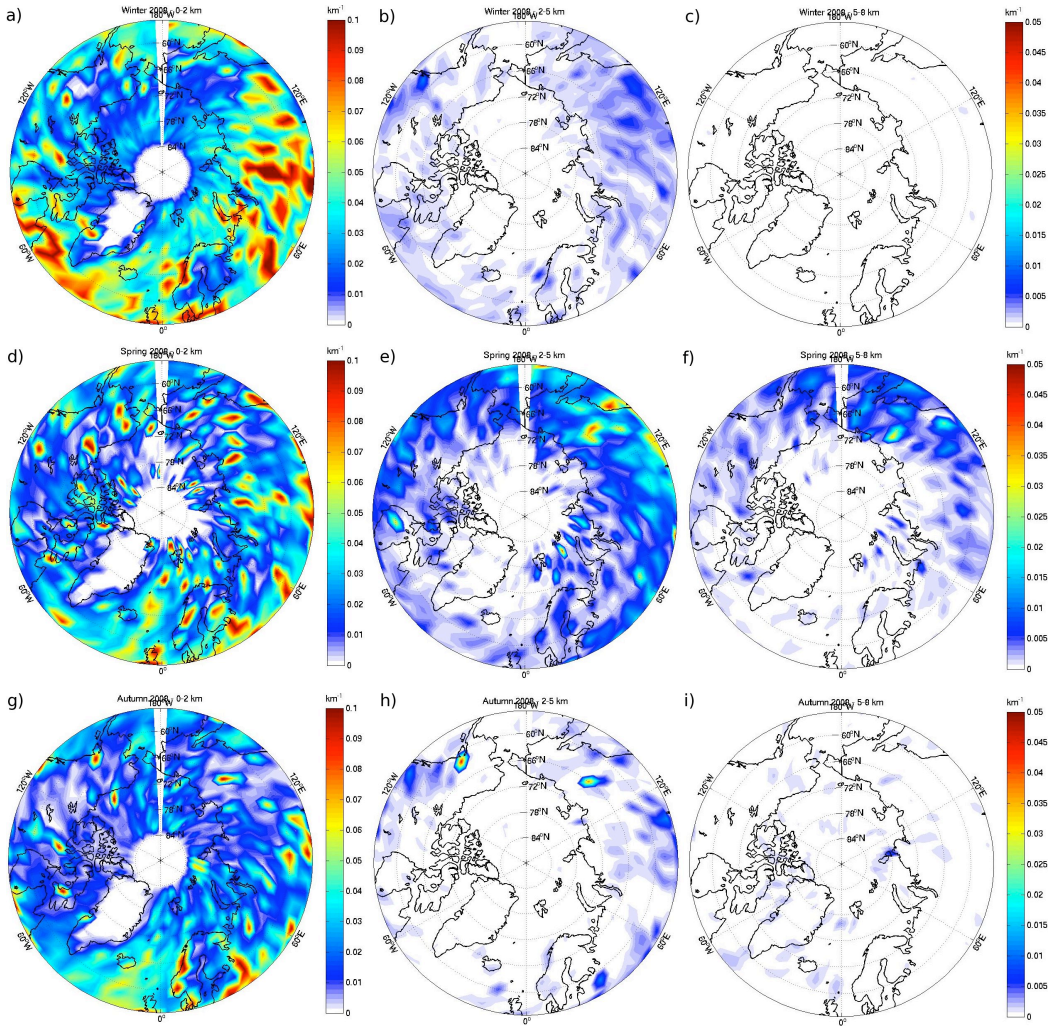

Figure 4.2 Distribution spatiale des profils de nuit (combinées: cloud free + above cloud) d'extinction des aérosols moyennés sur différentes saisons et altitudes au-dessus de l'Arctique à l'aide des données CALIOP de niveau 3.

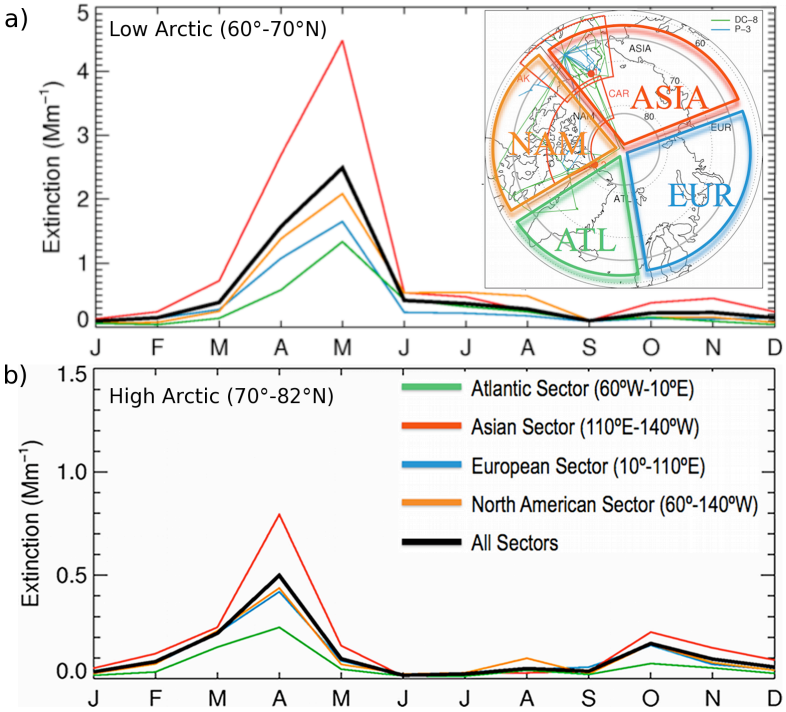

Figure 4.3 Cycle saisonnier de l'extinction des aérosols moyennée sur 5 jours pour la période de juin 2006 à mai 2012 à l'aide des données de niveau 2 de CALIPSO (profils de nuit et de jour) pour différents secteurs de l'Arctique (Di Pierro et al., 2012).

Les Figures 4.3 et 4.4 présentent, respectivement, les variations saisonnières et interannuelles de l'extinction des aérosols moyennée sur 5 jours pour la période de juin 2006 à mai 2012 à l'aide des données de niveau 2 de CALIPSO, selon l'étude de Di Pierro et al. (2012). Les résultats montent que la brume Arctique est un phénomène présent sur l'ensemble de la région Arctique au printemps avec un maximum d'extinction des aérosols dans les secteurs d'Asie (110°E-140°W) (Figure 4.3a). La variabilité interannuelle est relativement faible dans la basse troposphère. Dans la troposphère libre, la pollution au-dessus du cercle arctique est présente entre les mois d'octobre à avril et les anomalies de feux de biomasse et les éruptions volcaniques sont à l'origine de la variabilité observée durant la période considérée (Figure 4.4).

En résumé, la zone la plus favorable à la présence d'aérosols acides en avril 2008 dans la troposphère libre s'étend du sud du détroit de Béring au nord du Canada, en passant par l'Alaska. En raison de la grande sensibilité du satellite OMI (Spectromètre UV-Visible) à l'angle zénithal du soleil, nous ne pouvions pas avoir d'informations sur la

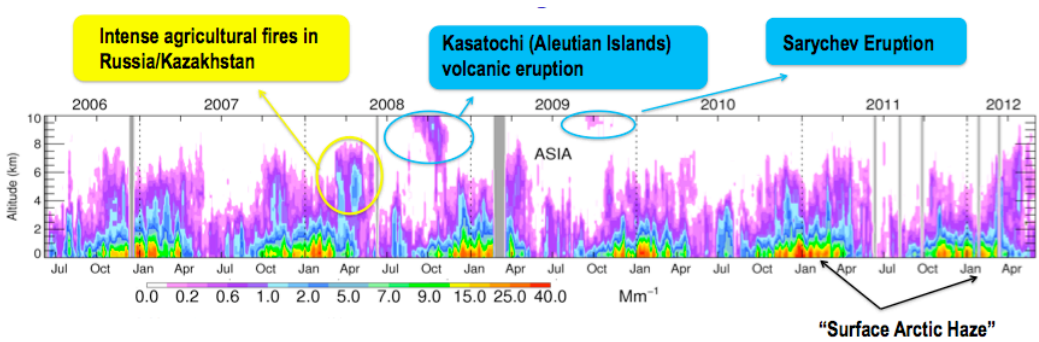

Figure 4.4 Variabilité inter-annuelle de l'extinction des aérosols moyennée sur 5 jours pour la période de juin 2006 à mai 2012 en fonction de l'altitude à l'aide des données de niveau 2 de CALIPSO (profils de nuit et de jour) au-dessus du cercle Arctique (Di Pierro et al., 2012).

distribution spatiale du SO_2 dans la troposphère libre par saison au-dessus de l'Arctique, particulièrement pour les saisons d'hiver et automne. Cependant les produits CALIOP seuls révèlent que les aérosols sont présents dans la troposphère libre entre les mois d'octobre à avril, particulièrement dans le secteur Asie, et leur concentration ainsi que leur degré d'acidité dépendent, entre autres, de phénomènes à court terme tels que les éruptions volcaniques et les feux de biomasse.

4.3 État thermodynamique de l'atmosphère arctique

La Figure 4.5 présente la distribution spatiale de l'RH_{Water}, de l'RH_{Ice} et de la T_a à 500 hPa moyennées sur le mois d'avril 2008 à l'aide des réanalyses ECMWF au-dessus de l'Arctique. Dans cette exemple, les conditions thermodynamiques nécessaires à la formation des TICs-2B observés pendant ISDAC (i.e. -40 °C $< T_a <$ -30 °C et RH_{Ice} $>$ 120 %) pour le mois d'avril 2008 s'étendent sur une large région comprenant le nord de l'Alaska, la mer de Beaufort, l'Océan Arctique, les mers de Kara et de Laptev, et une bonne partie du nord de la Russie jusqu'à 60 °N de latitude.

Fuelberg et al. (2010) ont analysé les écarts de la pression au niveau de la mer et de la hauteur du géopotentiel à 500 hPa calculés sur la période du 30 mars au 22 avril 2008 (ARCTAS - printemps 2008) par rapport aux moyennes climatologiques au-dessus de l'hémisphère nord (Figure 4.6). Les résultats montrent que les trajectoires des cyclones des latitudes moyennes de l'est de l'Asie et du nord de l'Océan Pacifique étaient déplacées plus au nord par rapport à leur position climatologique durant ARCTAS (Figure 4.6).

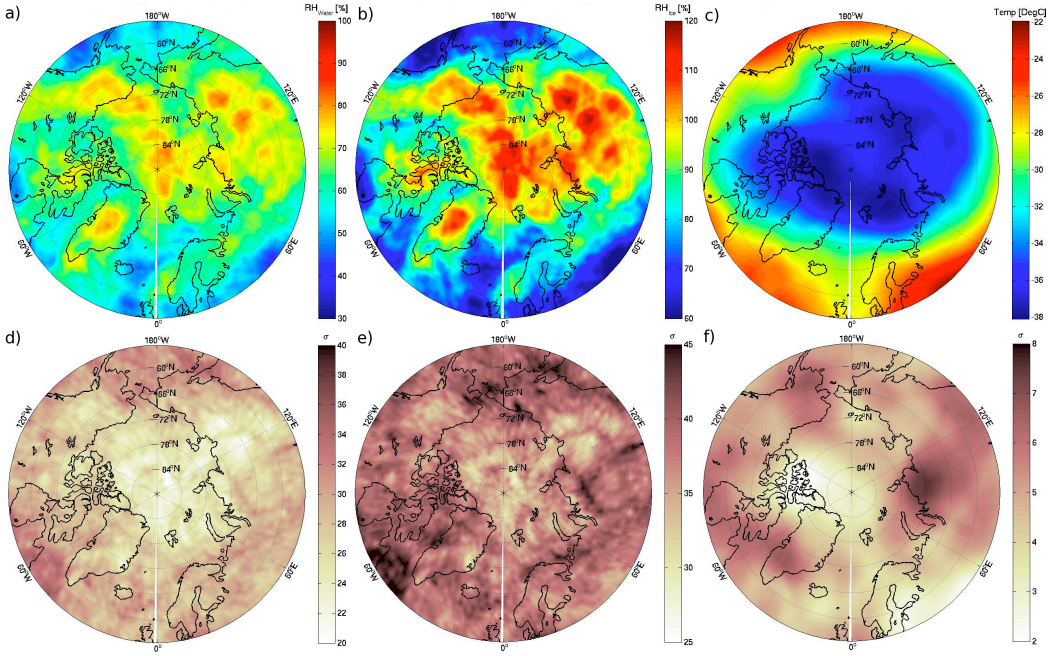

Figure 4.5 Distribution spatiale de RH_{Water} (a), RH_{Ice} (b) et T_a (c) à 500 hPa moyennées sur le mois d'Avil 2008 avec les déviations standards associées (respectivement; d, e, f), à l'aide des réanalyses ECMWF au-dessus de l'Arctique.

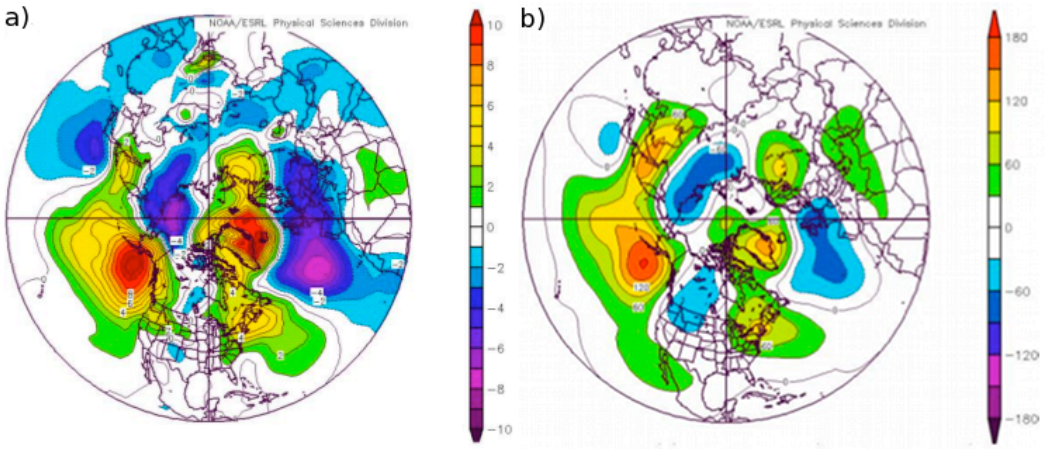

Figure 4.6 Écarts de la pression au niveau de la mer (a) et de la hauteur du géopotentiel à 500 hPa (b) calculés sur la période du 30 mars au 22 avril 2008 par rapport à le moyenne climatologique au-dessus de l'hémisphère nord (Fuelberg et al., 2010).

Ainsi au lieu de se dissiper au-dessus du Golfe de l'Alaska, la plupart d'entre elles se dissipaient au nord de l'Alaska, expliquant l'intrusion de fortes concentration d'aérosols dans cette région. Aussi l'Oscillation Nord-Atlantique (ONA) était en phase négative au printemps 2008, ce qui indique que les hauteurs du géopotentiel et les pressions au niveau de la mer étaient au-dessus de la normale dans les hautes latitudes de l'Atlantique Nord, et en-dessous de la normale sur le centre de l'Atlantique Nord, l'est des Etats-Unis, et en Europe occidentale. Selon Eckhardt et al. (2003), les valeurs négatives de l'indice ONA sont associées à une diminution du transport de la pollution dans l'Arctique par rapport à la phase positive.

Devasthale et al. (2010) présentent des statistiques détaillées sur les nuages de glace optiquement minces au-dessus de l'Arctique à l'aide des données CALIPSO pour la période de Juin 2006 à mai 2010. Les résultats de la fréquence d'occurence des nuages de glace par saison en fonction de la hauteur (Figure 4.7a) montrent que leur sommet sont majoritairement situés entre 5 et 7 km d'altitude pour les saisons d'hiver et de printemps et entre 6 et 8 km d'altitude pour la saison d'automne, en accord avec les résultats in-situ et satellitaires obtenues pour les différents TICs ISDAC. Durant ces trois saisons et aux mêmes altitudes, les températures sont en moyenne comprises entre - 30 ˚C et -50 ˚C (Figure 4.7b); valeurs de températures pour lesquelles l'effet SIFI est actif.

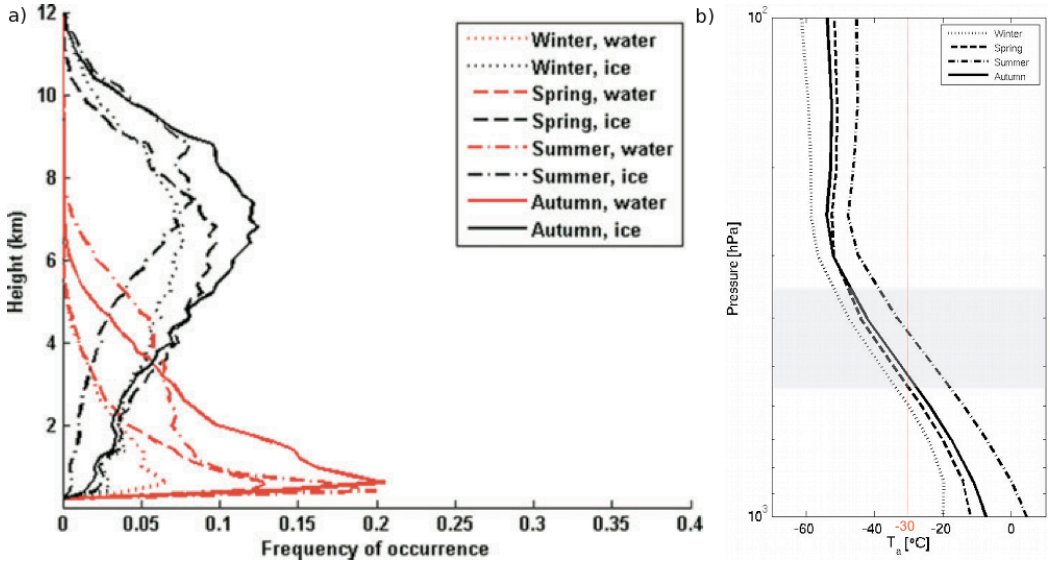

Figure 4.7 Fréquence d'occurence des nuages d'eau liquide et de glace pour différentes saisons en fonction de la hauteur pour la période de juin 2006 à mai 2010 au-dessus du cercle Arctique, obtenue à l'aide des données CALIPSO (Devasthale et al., 2011) (a); Moyenne de la température de l'air pour différentes saisons en fonction de la hauteur pour la période de juin 2006 à mai 2010 au-dessus du cercle Arctique, obtenue à l'aide des données NCEP2 (b) - le rectangle bleu représente la zone comprises entre ∼5 et ∼8 km d'altitude.

D'un point de vue thermodynamique et de présence d'aérosols acides, durant le mois d'avril 2008, les zones propices à la formation des TIC-2B sont le nord de l'Alaska. D'après l'analyse saisonnière de la distribution des aérosols (acides ou pas) et de l'état thermodynamique de l'atmosphère Arctique, la zone propice à la formation des TIC-2B durant la nuit polaire arctique semble être le secteur Asie (110°E-140°W).

CHAPITRE V

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

5.1 Conclusions

Tout au long de ce projet de recherche doctoral, nous nous sommes efforcés de répondre aux principaux objectifs de départ qui sont l'identification des processus de formation des nuages de glace arctiques et l'évaluation du rôle des aérosols acidifiés dans leur formation à partir de données d'observations in-situ et satellitaires.

Nous avons pu mettre en évidence deux types de TICs (TIC-1/2A vs TIC-2B) qui diffèrent par la concentration en nombre et la taille des cristaux de glace; ainsi que par les valeurs de l'humidité relative par rapport à la glace. Les résultats montrent que les différenciations dans la microstructure des deux nuages de glace sont confinées dans la partie supérieure du nuage, liées à des processus d'activation des aérosols/cristaux. L'analyse des rétro-trajectoires associée aux données OMI confirment que les masses d'air qui alimentent les deux TICs sont caractérisées par des sources d'aérosols distinctes; plutôt minéral pour le TIC-1/2A et avec de fortes concentrations de SO_2 pour le TIC-2B-F21.

Malheureusement, le manque d'informations in-situ sur la concentration initiale des noyaux glaçogènes et leur composition chimique, ne nous a pas permis de valider l'hypothèse de l'effet SIFI.

Néanmoins, l'ensemble des résultats de la situation synoptique, de la caractérisation in-situ des propriétés nuageuses ainsi que des sources, du transport des masses d'air et de l'analyse de la nature et des propriétés des aérosols en amont des nuages de glace, montrent des conditions favorables à une implication de l'effet SIFI dans la formation du TIC-2B-F21.

L'ensemble des conditions favorisants la formation des TIC-2B par une implication de l'effet SIFI semblent être potentiellement réunies durant les nuits polaires dans tout le secteur Asie de l'Arctique.

5.2 Justification des orientations de recherche

La première étape de ce projet de recherche a été de sélectionner la (ou les) campagne(s) de mesures appropriée(s) pour l'étude des interactions nuages de glace–aérosols acidifiés en Arctique durant la saison froide. ISDAC semblait être la campagne de mesures idéale pour plusieurs raisons. Elle se déroulait en Alaska proche des volcans actifs du Kamchatka-Aléoutiennes en avril 2008. Selon Shupe (2011b) les moyennes mensuelles d'occurrence des nuages de glace sur les deux sites de Barrow et SHEBA sont généralement de ±15 % la moyenne annuelle (41-47 %) avec un maximum distinct pendant les mois d'Avril. De plus, comme nous l'avons vu, la présence de la brume arctique est particulièrement prépondérante durant cette période (Law et Stohl, 2007).

Durant l'expérience ISDAC, vingt-sept vols scientifiques ont été réalisés pour des mesures in-situ dans les nuages entre les sites de Barrow et de Fairbanks dans diverses conditions météorologiques, avec plus de 40 instruments dont un ensemble complet de capteurs dynamique, thermodynamique, microphysique, de rayonnement et d'aérosols. Parmi les instruments destinés à la mesure microphysique des nuages, le Convair-580 était équipé de la sonde 2DS qui a l'avantage de couvrir un large spectre de diamètre des particules (10 μm-1280 μm) dont une gamme de diamètre de 50 à 150 μm qui a été traditionnellement difficile à mesurer. Cet instrument s'est avéré très utile dans notre étude puisque la différenciation dans la microstructure des TIC-1/2A versus TIC-2B repose sur un seuil de R_{ei} moyen qui a été mesuré de l'ordre de ∼110 μm, pour une $RH_{Ice} > 100$ % et un $IWC < 0.03$ g.m^{-3}.

La deuxième étape importante a été de sélectionner les instruments in-situ appropriés pour la mesure des paramètres microphysiques et optiques des nuages de glace. À partir des meilleures combinaisons possibles de compteurs de particules, la première difficulté a été de dériver les quantités intégrales (IWC, α_{ext}, R_{ei}). Il aurait été intéressant d'avoir un ordre de grandeur de l'incertitude associée à la masse estimée pour ces mesures particulières. Nous voulions évaluer l'incertitude des quantités intégrales dérivées des compteurs de particules en les comparant aux instruments à fil-chaud (Nevzorov, CSI and King) qui eux donnent une mesure directe de ces paramètres. Mais soit nous n'avions pas accès aux données en début d'analyse ou soit celles-ci étaient défectueuses/manquantes

pour les vols d'intérêts. Il existe des méthodes automatiques de reconnaissance de forme des particules qui sont appliquées aux images des sondes CPI ou 2DS. Ces méthodes trient chaque cristal de glace dans une classe de forme d'un cristal préalablement spécifiée en fonction de ses caractéristiques morphologiques. Ces méthodes permettent de dériver les quantités intégrales dans chacune des classes de forme du cristal avec la relation masse-diamètre correspondante et ainsi de minimiser les incertitudes liées au choix de la relation masse-diamètre. Nous n'avions pas accès à ces méthodes automatiques de reconnaisance de forme des cristaux de glace. Cette méthode dîtes CPI-mD a été utilisée dans Jackson et al. (2012) pour des cas de nuages de type stratus en phase-mixte durant ISDAC et M-PACE. Les quantités d'IWC ont été dérivées de différentes PDS de compteurs de particules (2DS, 2DC, CIP, 2DP) selon les méthodes BL06 et CPI-mD. Ensuite elles ont été comparées aux quantités intégrales d'IWC des sondes à fil-chaud (CSI, Nevzorov). Les résultats montrent des différences moyennes entre IWC_{BL06} et $IWC_{CSI/NEVZOROV}$ plus grandes autour d'un facteur 2 comparé aux différences entre IWC_{CPI-mD} et $IWC_{CSI/NEVZOROV}$. La méthode CPI-mD donne des valeurs plus compatibles avec les quantités intégrales IWC. Ces résultats suggèrent que les incertitudes liées aux quantités intégrales dérivées sont principalement dues aux incertitudes sur la reconnaissance de forme des particules dans le choix de la relation aire-masse-diamètre.

Cependant, dans notre étude nous nous sommes intéressés à la différence des paramètres microphysiques N_{ic} et R_{ei} entre les différents TICs ayant une quantité IWC relativement similaire. La variable R_{ei} a été calculée à partir de la définition de Stephens et al. (1990) qui a pour avantage de ne nécessiter que de la connaissance de D et $N(D)$. À partir du moment où l'on utilise les mêmes instruments in-situ et/ou satellitaire pour évaluer des différences entre deux types de nuages, tant que les incertitudes dans la mesure sont inférieures aux différences observées, les résultats sont significatifs (ce qui est le cas dans notre étude). Les erreurs systématiques, les incertitudes liées à l'instrument ne devraient pas être gênantes pour ce type d'analyse.

L'étude des propriétés (taille, concentration, composition chimique, acidité, etc...) des noyaux glaçogènes à l'origine de la formation des TICs a été l'étape la plus problématique dans ce projet de recherche. Nous avons du suivre une autre approche afin de déterminer le potentiel d'acidité des masses d'air étudiées. Les études lagrangiennes sur l'évolution des propriétés optiques des aérosols, effectuées par la combinaison du modèle FLEXPART avec l'analyse des données CALIPSO le long des trajectoires, ont été réalisées pour la première fois par Adam de Villiers et al. (2010). Cette méthodologie présente

certaines limites. Dans la majorité des cas, la dispersion des «cluster» est trop grande après 4-5 jours pour identifier un lien direct avec une région de source unique. Pour les couches d'aérosols de faibles épaisseurs optiques observées en Arctique, les incertitudes liées aux paramètres optiques ($\beta_{532,att}$, CR_{att}, δ_v) du lidar CALIOP sont très grandes (50 à 100 %). L'évolution temporelle des propriétés optiques de l'aérosol suggère une diminution de $\beta_{532,att}$ et δ_v après quelques jours de transport au dessus de l'Arctique. Elles ne permettent pas une analyse quantitative sur la composition de l'aérosol et son évolution. Adam de Villers et al (2010) ont analysé en détail l'évolution de différentes couches d'aérosols observées au nord de la Scandinavie (POLARCAT, 2008). Selon leurs résultats, 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. Les aérosols de pollution d'origine anthropique et issus des feux de biomasse sont caractérisés par de faibles valeurs de CR_{att} (≤ 0.3) et peu de dépolarisation tandis que les poussières désertiques d'Asie Centrale sont caractérisées par des $CR_{att} > 0.4$ et des $\delta > 10$ %. Dans nos résultats, l'analyse de nos couches d'aérosols au-dessus de l'Alaska, montre des valeurs de CR_{att} faibles avec peu de variation et des valeurs de dépolarisations ne dépassant pas les 7 %. 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, soit par des processus de dépositions affectant les gros aérosols hydrophiles pendant les processus de transport au-dessus de l'Océan Pacifique. Une méthode, basée sur les profils de β_p et de δ_p à la même longueur d'onde du lidar CALIOP, a été utilisée pour séparer les profils des paramètres optiques de différents types d'aérosols. Le mélange interne ou externe des aérosols se produit en raison des longues distances parcourues par les masses d'air à travers différentes régions de sources d'émission d'aérosols avant la détection. Les valeurs des rapports de dépolarisation des particules d'aérosols de types «purs» (poussières désertiques, aérosols de combustion de biomasse, anthropiques, etc.), utilisées dans notre étude, sont tirées de la littérature et représentent généralement des valeurs de δ_p prisent proche des sources d'émission. Müller et al (2005) ont mesuré des rapports de dépolarisation des particules plus faibles de l'ordre de 0.02-0.03 à 532 nm au-dessus de Leipzig en Allemagne pour des aérosols, dîts âgés de par leur temps de résidence dans l'atmosphère, de feux de forêt en provenance du Canada et de la Sibérie. Le choix des valeurs de δ_p est la principale source d'incertitudes dans la restitution des profils du coefficient de rétrodiffusion des différents types d'aérosols. Néanmoins, cette méthode s'avère très utile dans notre étude, pour séparer la contribution des polluants sur les poussières désertiques à l'origine de la formation des TICs et ainsi pour se faire une idée du degré d'acidification des masses d'air

étudiées.

Les émissions anthropiques et/ou volcaniques contribuent à une grande variabilité dynamique des concentrations de SO_2 dans l'Atmosphère et pose un défi particulier pour une restitution précise de la quantité de SO_2 à partir des données OMI. Plusieurs facteurs peuvent modifier le signal OMI SO_2: les réactions chimiques et le dépôt sec de SO_2 peuvent réduire le signal; un changement dans la distribution verticale du panache du SO_2 peut améliorer le signal; les nuages peuvent améliorer la sensibilité de OMI à détecter le SO_2 situé au-dessus, mais peuvent aussi bloquer cette sensibilité si le SO_2 est situé en-dessous de la couche nuageuse. Il en résulte que le panache de SO_2 qui peut être facilement détectée au-dessus de sa source d'émission devient moins visible par OMI au fur et à mesure que celui-ci s'en éloigne. Cependant, les résultats du Chapitre III montrent que OMI offre une perspective unique sur la variabilité du transport de SO_2 dans l'Arctique et peut être utilisé pour identifier les transports de pollution à longue distance combiné au modèle de trajectoire FLEXPART.

5.3 Originalité et Perspectives

L'étude est innovante par les analyses proposées, les différents types d'instruments utilisés et les observations à différentes échelles dans la région identifiée. Elle montre l'intérêt de coordonner diverses techniques d'observation (campagnes de mesures, expériences en laboratoire, satellites, modèle de transport couplant la dynamique et la physico-chimie) afin de prendre en compte les interactions complexes qui dictent le cycle de vie d'un nuage et des aérosols aux échelles locales et à méso-échelle. Elle montre l'intérêt d'effectuer des synergies entre les instruments (sondes in-situ ou lidar/radar) afin de couvrir un plus large spectre de diamètre des particules.

Les paragraphes suivants proposent plusieurs perspectives pour l'identification in-situ de l'effet SIFI et le développement de l'analyse régionale par des observations satellitaires couplées à un modèle de transport des masses d'air pour l'identification à grande échelle de l'effet SIFI; une analyse préalablement introduite par le Chapitre IV.

- Bien que les données utilisées dans ce travail de recherche soient limitées, les résultats des deux cas d'étude (TIC-1/2A-F9 et TIC-2B-F21) constituent les premières mesures in-situ détaillées des TICs arctiques et mettent en évidence les différences de microstructure entre eux. Une plus large base de données in-situ permettrait de réaliser une analyse statistique beaucoup plus robuste sur les différences microphysiques entre les TICs. Et

afin de confirmer l'hypothèse du rôle des aérosols acidifiés dans leur formation, de nouvelles campagnes de mesures dédiées à étudier les interactions aérosols acides et nuages de glace devraient être mises en place dans les régions où les conditions favorables à l'hypothèse sont réunies; i.e. au-dessus de l'Alaska et du nord-est de la Russie durant la nuit polaire. Les avions devraient être aussi bien équipés que le convair-580 d'ISDAC, avec un ensemble complet de capteurs destinés à la mesure de l'état atmosphérique, des propriétés microphysiques des nuages, des précipitations, des aérosols, et plus spécifiquement des noyaux glaçogènes (ex: CFDC); en ajoutant des instruments consacrés à la mesure des sulfate, nitrate et ammonium afin d'obtenir l'acidité des aérosols tel que le spectromètre de masse des aérosols (AMS). Les instruments utilisés pour l'analyse des aérosols pourraient être utilisés aussi bien en aval de la veine communautaire pour échantillonner des particules d'aérosol dîtes « background » en ciel clair ou d'aérosol interstitiel en ciel nuageux; qu'en aval de la veine CVI (Counterflow Virtual Impactor) permettant l'analyse des IN résiduels, extraits des cristaux de glace en ciel nuageux.

- La comparaison qualitative entre les propriétés nuageuses des études de cas ISDAC (TIC-1/2A-F9 et TIC-2B-F21) avec celles restituées par l'algorithme VarCloud situées spatio-temporellement à proximité des vols, nous a permis de valider les produits Dardar dans leur capacité à reproduire la structure verticale des TICs. Ainsi, en prenant pour références les valeurs des variables Dardar (IWC, R_{ei} et IWC/R_{ei} (indice de concentration)) des nuages TIC-1/2A-F9 et TIC-2B-F21, l'algorithme Varcloud pourrait-être utilisé pour définir le type de TIC dans les régions supérieures des nuages glacés détectées par les deux instruments. Il serait intéressant de discuter de la distribution spatiale de la taille des cristaux observées par les données satellitaires DARDAR dans les nuages glacés entre 5 et 8 km d'altitude au-dessus de l'Arctique. Le produit DARDAR peut encore être amélioré avec l'information du radiomètre imageur infrarouge embarqué sur CALIPSO. La restitution en taille des particules nuageuses est plus sensible dans l'infrarouge. Ainsi, combinée aux mesures lidar et radar, il permettrait de travailler sur 3 moments au lieu de 2, ce qui devrait donner des résultats plus précis du R_{ei} et de IWC (Garnier et al., 2012, 2013). Une autre proposition consiste à utiliser l'infrarouge lointain (IRL) afin d'améliorer l'inversion de la taille des particules. L'IRL est plutôt sensible aux particules qui ont des D_{eff} inférieurs à 130 μm, ce qui le rend particulièrement adapté pour faire la discrimination entre les TIC-1 et les TIC-2 (Blanchard, 2011). En parallèle, on pourrait compléter cette information avec des mesures sur la distribution spatiale de l'extinction des aérosols par CALIOP discutées dans la section

4.2. Mais parce que la concentration des aérosols n'est pas corrélée avec la concentration des noyaux glaçogènes, il serait intéressant de caractériser les particules minérales à partir des données satellitaires du rapport de dépolarisation et de couleur CALIOP. En fonction de la contribution des polluants anthropiques et/ou des fumées de combustion de biomasse, de la voix de transport des polluants jusqu'en Arctique (au-dessus du continent ou de l'Océan), de la situation synoptique (accumulation ou pas de polluants) et de l'acitivité des volcans situés sur le passage des masses d'air; leur degré d'acidité sera plus ou moins important dans la zone d'étude. Une étude lagrangienne «climatologique» menée avec des simulations du modèle de transport, FLEXPART, combinées aux mesures des satellites OMI et CALIOP, pourrait être une approche intéressante afin de préciser plus finement l'évolution des aérosols volcaniques et du SO_2 transportés en Arctique à partir des sources d'émissions bien définies. Les instruments qui utilisent la bande spectrale de l'infrarouge thermique permettent de fournir des informations pour les passages de nuit. L'utilisation d'un modèle incluant des modules de chimie et des aérosols (ex: Polar-WRF-CHEM) aiderait aussi à quantifier le rôle des aérosols acidifiés dans l'évolution des nuages de glace sur la région Arctique.

L'ensemble de ces résultats représentent une première étape essentielle et importante qui relie les précédentes études de modélisation, de télédétection et des résultats en laboratoire avec les observations in-situ des TICs. Il visent à développer certains paramétrages physiques qui pourront aider à la construction d'un outil de modélisation fiable qui servirait à simuler le climat arctique et global pour différents scénarios de changements climatiques reliés aux effets indirects des aérosols.

Ce travail qui s'appuie sur les interactions entre la microphysique nuageuse et les aérosols ouvre des perspectives très importantes pour mieux comprendre l'évolution du climat dans la région arctique exposée à la pollution atmosphérique. Il vise à améliorer nos connaissances sur les forçages radiatifs liés aux nuages froids et sur les effets radiatifs indirects des aérosols acidifiés. L'impact radiatif des gaz à effet de serre à l'origine du réchauffement climatique est connu pour différents scénarios d'émission possibles. Il n'en est pas de même pour les nuages de glace ou les aérosols. Selon l'IPCC (2001), les émissions de SO_2 globales devraient diminuer au cours des prochaines décennies. Toutefois, la croissance de la production d'énergie en Asie occidentale est prévue pour au moins les cinq prochaines années (Klotsvog et al., 2009, Lu et al., 2010) et pourrait augmenter l'acidité des aérosols transportés en Arctique comme observé par Quinn et al. (2009). Avec le réchauffement observé en Arctique, de nouvelles activités s'y implantent telles que les exploitations de gaz, de pétrole et de mines. L'augmentation

de ces polluants locaux pourraient jouer un rôle important sur l'acidification des aérosols dans la région.

Le but principal étant d'apporter des éléments de réponse à un problème de science et de société, à savoir la prédiction de l'amplitude et de l'évolution du réchauffement climatique.

APPENDICE A

TRAITEMENT DES MESURES CALIPSO-CLOUDSAT

A.1 Constellation des satellites A-Train

L'A-Train est une constellation de 6 satellites: AQUA (NASA, National Aeronautics and Space Administration), AURA (NASA), PARASOL (CNES, Centre National d'Études Spatiales), CALIPSO (NASA/CNES), CLOUDSAT (NASA/ASC, Agence Spatiale Canadienne) et OCO (NASA), dédiés à l'observation des nuages, des aérosols et du cycle de l'eau. Ces satellites se suivent à quelques minutes d'intervalle sur une orbite héliosynchrone à une altitude d'environ 705 km. Ils passent au-dessus de l'équateur à 13:30 heure locale d'où le nom d'≪Afternoon Train≫ avec un cycle de 16 jours. Cet ensemble (Figure A.1) rend ainsi possible des synergies entre les différents instruments embarqués.

A.2 La mission CloudSat

A.2.1 Radar profileur de nuages

Le satellite CloudSat a rejoint la constellation des satellites de l'A-Train en avril 2006. CloudSat est composé d'un radar CPR (Cloud Profiling Radar) à 94 GHz qui décrit la structure verticale des nuages de glace et des précipitations.

Le RADAR (RAdio Detection And Ranging) météorologique émet des impulsions brèves de manière périodique d'ondes électromagnétiques dans un faisceau de faible ouverture dans l'atmosphère. L'onde émise est rétrodiffusée par les hydrométéores présents dans le volume échantillonné. À partir du traitement de la puissance du signal reçu, on en déduit des informations sur le milieu observé. Plus la fréquence est élevée et plus le radar est capable de détecter les petites particules mais il est davantage atténué. Le radar CloudSat à 94 GHz a une sensibilité lui permettant de détecter par diffusion

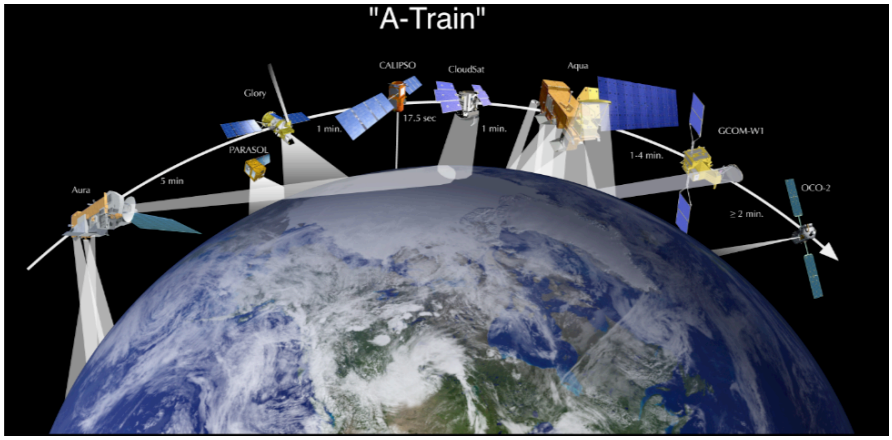

Figure A.1 Configuration de la constellation A-Train (http://smsc.cnes.fr/PARASOL/Fr/a-train).

Rayleigh les particules dont la taille est de l'ordre de sa longueur d'onde (3.2 mm) ou plus, idéal pour l'observation des nuages glacés. Son seuil de facteur de réflectivité est de -28 dBZ environ, avec une précision de 1.5 dBZ. Sa résolution horizontale est de 2.5 km le long de sa trajectoire sur 1.4 km (empreinte) et sa résolution verticale est de 240 m sur 125 pixels soit de 0 à 30 km d'altitude.

A.2.2 Equations du radar

Le signal mesuré par le radar CPR de CloudSat, P_r, peut s'exprimer par:

$$P_r(r) = C.L_r{}^2.\frac{1}{r^2}.\eta \tag{A.1}$$

avec C, une constante dépendante des caractéristiques du radar (longueur d'onde, puissance émise et caractéristiques d'antenne); $L(r)$, le facteur d'atténuation de l'onde sur le trajet radar-cible; r, la distance entre le radar et la cible, et η la section efficace de rétrodiffusion par unité de volume (i.e. la surface interceptée par l'onde électromagnétique au sein d'un volume élémentaire).

Les paramètres P_r, C, L et r sont connus, on peut en déduire la valeur de la section efficace de rétrodiffusion par unité de volume η.

Si l'on considère les hypothèses de Rayleigh (pour lesquelles, le diamètre des particules est petit devant la longueur d'onde du radar) et pour un ensemble de particules dis-

tribuées de façon homogène dans le volume échantillé, la réflectivité peut ensuite être convertie en réflectivité radar équivalente Z_{eq} [mm6.m^{-3}] qui s'écrit:

$$Z_{eq} = \int n(D).D^6.dD = \frac{\lambda^4}{\pi^5|K|^2}.\eta \tag{A.2}$$

avec $|K|^2$ la constante diélectrique de la cible. En général, le facteur diélectrique de l'eau retenu à 94 GHz et $T_a = 10$ °C est 0.93 pour l'eau, 0.18 pour la glace.

A.2.3 Méthode de traitement des mesures du radar Cloudsat

Les produits du radar CloudSat 2B-CWC-RO (Austin et al., 2007) contiennent les propriétés nuageuses restituées à partir de l'algorithme CWC qui sont le contenu en eau liquide (LWC), le contenu en glace (IWC), leur rayon effectif (R_e) et les quantités reliées pour chacun des profils radar. L'algorithme CWC restitue les propriétés nuageuses séparément entre la phase liquide de la phase glace. Il est donc supposé que l'ensemble d'un profil radar est soit en phase liquide soit en phase glace. Ensuite les deux profils sont combinés pour obtenir un profil «composite» en fonction de la température des réanalyses ECMWF. Nous nous intéresserons uniquement à la partie hydrométéores glacés.

Pour chaque profil radar, l'algorithme CWC examine le masque «nuage» avec les produits 2B-GEOPROF (Mace et al., 2007) pour déterminer les pixels nuageux de la colonne. Pour chaque pixel nuageux, une distribution dimensionnelle des particules (PDS) de loi log-normale est considérée. Elle est définie par les trois paramètres de la concentration totale des cristaux de glace (N_{ic}), le diamètre moyen géométrique (D_g) et l'écart-type (σ_g) de la distribution. L'algorithme CWC assigne des valeurs a priori pour estimer les trois paramètres définissants la PDS log-normale. Ces valeurs a priori sont déterminées à partir de bases de données microphysiques et sont choisies en fonction de la situation géographique et du type de nuage. À partir des définitions de la PDS log-normale, la réflectivité radar théorique est calculée.

Pour les nuages de glace minces, la taille des cristaux de glace est assez petite pour être modélisée par la diffusion de Rayleigh à la longueur d'onde de CloudSat. Dans cette hypothèse, l'équation de réflectivité radar (Z_{Ray}) pour la glace suit l'équation A.2.

Dans le cas de particules plus grandes ($D >$ plusieurs centaines de microns), la réflectivité radar est corrigée des effets de Mie par un facteur $f_{Mie}(D_g,\sigma_g)$ qui représente le rapport

Z_{Ray}/Z_{Mie} en fonction des paramètres D_g et σ_g de la PDS log-normale des cristaux de glace. La réflectivité équivalente est définie en faisant l'hypothèse que le volume échantillonné par le radar est constitué uniquement de particules d'eau liquide. En présence de particules de glace, on applique un facteur de correction ($\tilde{k}$). La réflectivité radar équivalente est donc définie selon l'équation:

$$Z_{eq} = Z_{Ray}.f_{Mie}(D_g.\sigma_g).\tilde{k} \tag{A.3}$$

où $\tilde{k} = 0.232$ est un facteur de correction constant (Stephens, 1994).

Une fois la réflectivité radar équivalente théorique calculée, elle est comparée à celle mesurée directement par le radar de CloudSat. Les valeurs a priori des trois paramètres de la PDS log-normale peuvent alors être modifiées jusqu'à ce que la réflectivité radar équivalente théorique concorde avec les mesures. Finalement, une fois que les trois paramètres de la PDS log-normale sont ajustées, les propriétés nuageuses sont déterminées à partir des équations suivantes et en faisant l'hypothèse de particules de glace sphériques:

Le contenu en glace:

$$IWC = \int \frac{\pi}{6}.\rho_i.n(D).D^3.dD \tag{A.4}$$

Le rayon effectif:

$$R_e = \frac{1}{2}.\frac{\int n(D).D^3.dD}{\int n(D).D^2.dD} \tag{A.5}$$

Le coefficient d'extinction:

$$\sigma_{ext} = 2.\int \frac{\pi}{4}.n(D).D^2.dD \tag{A.6}$$

Ces équations peuvent-être réécrites en fonction des paramètres de la PDS log-normale. Cet algorithme est décrit dans le document: Level 2B Radar-only Cloud Water Content (2B-CWC-RO) Process Description Document (Austin et al., 2007).

A.3 La mission CALIPSO

A.3.1 Lidar CALIOP

Le satellite CALIPSO (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation) a rejoint la constellation de satellites A-Train en avril 2006. CALIPSO est composé d'un radiomètre imageur infrarouge (IIR), d'une caméra à champ large dans

le visible (WFC) et d'un système lidar CALIOP (Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization).

Le LIDAR (LIght Detection And Ranging) CALIOP est un lidar à rétrodiffusion élastique. La diffusion élastique conserve la longueur d'émission, elle n'est pas modifiée par les constituants. Le fonctionnement du lidar repose sur le même principe que le radar, sauf que les ondes hyperfréquences sont remplacées par des ondes lumineuses encore plus courtes émises par un laser (visible, à 523 nm, et proche infrarouge, à 1064 nm). Une impulsion laser brève et de forte intensité est envoyée dans l'atmosphère au nadir du satellite. Celle-ci est diffusée dans toutes les directions par les molécules gazeuses, les aérosols et les particules nuageuses présents sur le trajet du faisceau laser. Un télescope, dont l'axe optique est parallèle à la trajectoire d'émission du laser, récupère le rayonnement diffusé vers l'arrière (rétrodiffusion). À partir de l'intensité et des caractéristiques spectrales du rayonnement rétrodiffusée, les profils verticaux des coefficients de rétrodiffusion sont déduits avec une résolution verticale variant de 60 à 300 m suivant l'altitude ainsi que les propriétés des constituants atmosphériques (molécules, aérosols, poussières).

Le lidar CALIOP possède deux différents canaux pour déterminer les propriétés optiques des aérosols et des nuages. Le canal à 532 nm (rayon vert) qui utilise un système optique pour séparer les composantes polarisées parallèle et perpendiculaire du signal rétrodiffusé afin d'obtenir une information sur la phase et la forme des particules et le canal à 1064 nm (proche infra-rouge) afin d'obtenir une information sur la taille des particules par comparaison avec le canal à 532 nm (voir figure A.2).

A.3.2 Equations du lidar

Le signal rétrodiffusé mesuré par le lidar CALIOP, P_l, peut s'exprimer par:

$$P_{l,\lambda}(z) = C.[\beta_{\lambda,m}(z) + \beta_{\lambda,p}(z)].T^2_{\lambda,m}(z).T^2_{\lambda,O_3}(z).T^2_{\lambda,p}(z) \tag{A.7}$$

où

$$T^2_{\lambda,x}(z) = exp.[-2.\int_0^z .\sigma_{ext,\lambda,x}z'.dz'] \tag{A.8}$$

avec C, le coefficient de calibration, indépendant de l'altitude z, et propre au système lidar; $\beta_{\lambda,m}$ et $\beta_{\lambda,p}$, les coefficients de rétrodiffusion volumique des contributions moléculaires m et particulaires p; $T^2_{\lambda,m}$, T^2_{λ,O_3} et $T^2_{\lambda,p}$, les transmittances correspondantes respectivement aux molécules d'air, à l'ozone et aux particules du milieu traversé (aller et retour) par le signal entre le laser et le volume échantillonné; $\sigma_{ext,\lambda,x}$ est le coefficient d'extinction

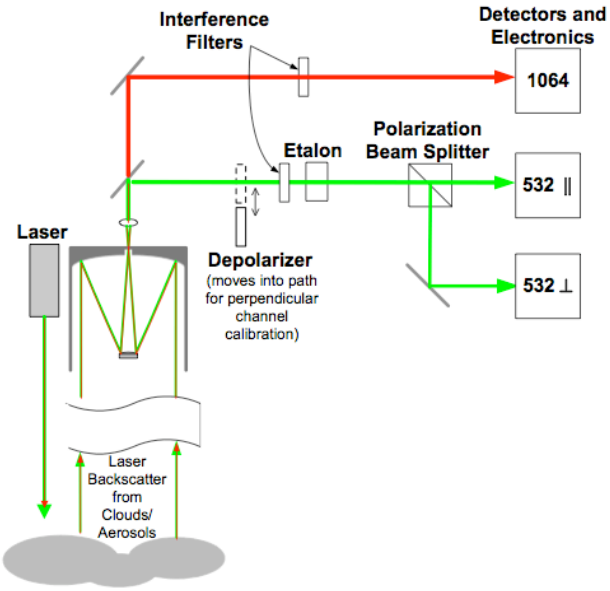

Figure A.2 Schéma optique du lidar CALIOP.

du volume de mesure pour chaque constituant, x.

Le coefficient de calibration C est déterminé en supposant qu'il n'y a pas d'aérosols dans la tranche d'altitude 30-34 km, à partir du signal lidar et de la contribution de la diffusion moléculaire. La contribution de la diffusion moléculaire est calculée à l'aide des sorties du modèle météorologique GMAO (Global Modelling Assimilation Office). Les coefficients de rétrodiffusions sont ainsi étalonnées et on obtient les données CALIOP de niveau 1 de la forme:

$$\beta_{\lambda,att}(z) = [\beta_{\lambda,m}(z) + \beta_{\lambda,p}(z)].T^2_{\lambda,m}(z).T^2_{\lambda,O_3}(z).T2_{\lambda,p}(z) \tag{A.9}$$

où $\beta_{\lambda,att}$ peut être le coefficient de rétrodiffusion total (particulaire+moléculaire) atténué à 532 nm ($\beta_{532,att}$), le coefficient de rétrodiffusion total atténué polarisé perpendiculairement à 532 nm ($\beta_{532,att,\perp}$), le coefficient de rétrodiffusion total atténué à 1064 nm ($\beta_{1064,att}$), etc.

Le rapport lidar S est un paramètre important utilisé dans la restitution du coefficient d'extinction à partir des mesures du coefficient de rétrodiffusion atténué du lidar. Il y a deux inconnues dans l'Équation du lidar (eq. A.7), β_λ(z) et $\sigma_{ext,\lambda}$(z) qui caractérisent les

propriétés des constituants atmosphériques échantillonnés dans un volume à l'altitude z et à la longueur d'onde λ. Une solution n'est possible que si une relation peut être établie (ou prescrite) entre les deux inconnues. C'est le rapport lidar:

$$S = \frac{\beta_\lambda(z)}{\sigma_{ext,\lambda}(z)} \tag{A.10}$$

Le rapport des deux coefficients de rétrodiffusion par les particules avec 2 polarisations différentes à 532 nm, s'appelle le rapport de dépolarisation particulaire, $\delta_{532,p}$, donné par :

$$\delta_{532,p}(z) = \frac{\beta_{532,\parallel,p}(z)}{\beta_{532,\perp,p}(z)} \tag{A.11}$$

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

$$CR(z) = \frac{\beta_{1064,p}(z)}{\beta_{532,p}(z)} \tag{A.12}$$

Ces rapports dépendent essentiellement de la précision absolue du coefficient de rétrodiffusion obtenue. Le rapport de dépolarisation particulaire et le rapport de couleur particulaires sont disponibles dans les données CALIOP niveau 2. Ils sont obtenus en appliquant une correction au coefficient de rétrodiffusion total atténué pour compenser l'atténuation du signal par les molécules d'air et l'ozone calculé à l'aide des sorties du modèle météorologique GMAO.

Le rapport du coefficient de rétrodiffusion total atténué perpendiculaire, sur le coefficient de rétrodiffusion total atténué parallèle des produits de niveau 1 CALIOP est appelé pseudo rapport de dépolarisation δ^*_{532} (ou rapport de dépolarisation volumique dans le chapitre III δ_v), et défini comme:

$$\delta^*_{532}(z) = \frac{\beta_{532,att,\parallel}(z)}{\beta_{532,att,\perp}(z)} \tag{A.13}$$

Le rapport du coefficient de rétrodiffusion total atténué à 1064 nm sur 532 nm, des produits de niveau 1 CALIOP est appelé pseudo rapport de couleur CR^* (ou rapport de couleur total atténué dans le chapitre III CR_{att}) et défini comme:

$$CR^*(z) = \frac{\beta_{1064,att}(z)}{\beta_{532,att}(z)} \tag{A.14}$$

Le rapport de dépolarisation est important pour connaître la forme des particules ob-

servées et en déduire la phase (liquide ou glace) du nuage. Ainsi, les particules d'eau liquide sphériques sont caractérisées par un rapport de dépolarisation faible alors que les particules de glace de géométrie plus complexe le sont par un rapport de dépolarisation élevé. Le rapport de couleur donne une information sur la taille des particules et est utile pour mettre en évidence des panaches d'aérosols âgés, qui, au cours du transport se seraient, par exemple, transformés en noyaux de condensation. Associés à des mesures de dépolarisation, ils permettent de discuter qualitativement la nature de l'aérosol.

Le coefficient de rétrodiffusion total atténué à 532 nm, les pseudo rapports ou rapports de dépolarisation et de couleur sont les variables principales utilisées pour étudier les couches d'aérosol observées dans le cadre de cette thèse.

A.3.3 Méthode de traitement des mesures du lidar CALIPSO

Le traitement des données brutes du lidar CALIOP pour la détermination des propriétés des couches nuageuses et aérosols se fait suivant plusieurs étapes à l'aide de trois principaux algorithmes.

L'algorithme SIBYL (Selective Iterated BoundarY Locator) définit les limites des altitudes du sommet et de la base des couches nuageuses et/ou d'aérosol. Une couche nuageuse ou d'aérosol est définie comme une région contiguë présentant un signal de rétrodiffusion qui dépasse la valeur de rétrodiffusion moléculaire attendue en ciel clair. L'algorithme SIBYL est décrit dans la partie 2 du document ATBD (Algorithm Theoretical Basis Document): Feature Detection and Layer Properties Algorithms (Vaughan et al., 2005).

L'algorithme SCA (Scene Classifier Algorithm) définit la nature (nuage/aérosol), la phase (liquide/glace) et le type (marin, continental, désertique pour les aérosols, par exemple) des particules dans les différentes couches observées. La distinction entre les nuages et les aérosols se fait à partir des différences entre le coefficient de rétrodiffusion total atténué à 532 nm ($\beta_{532,att}$) et le rapport de couleur (CR) selon les valeurs du modèle OPAC (Optical Properties of Aerosols and Clouds), développé par Hess et al. (1998a, 1998b) (voir la figure A.3). En général, les couches nuageuses ont un coefficient de rétrodiffusion et un rapport de couleur ($\sim$1) plus grand que les couches d'aérosols; excepté pour les aérosols désertiques et maritimes sous des conditions de forte humidité relative, qui ont un rapport de couleur relativement élevé.

Après la distinction des couches nuageuses des couches d'aérosols, l'algorithme SCA

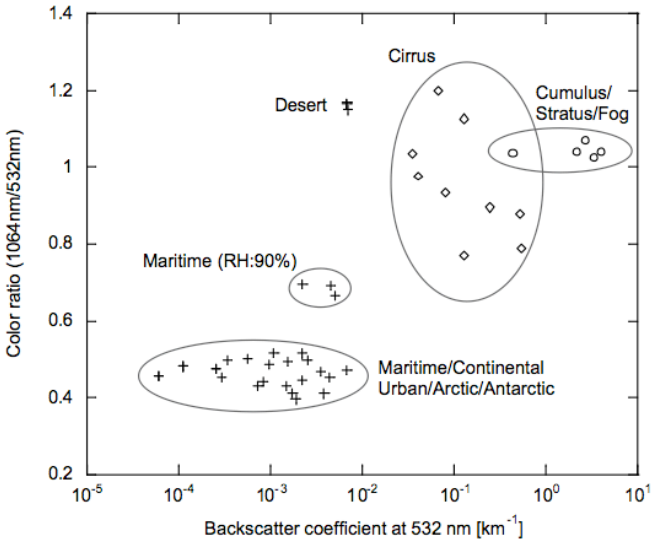

Figure A.3 Classification des scènes atmosphériques par le modèle OPAC (Hess et al., 1998a, 1998b) à partir des valeurs du rapport de couleur CR en fonction du coefficient de rétrodiffusion β_{532} [km^{-1}.sr^{-1}].

tente d'identifier le type d'aérosol dans la couche. Une table de correspondance (LUT pour Look-Up Table) permet d'associer un rapport lidar aux propriétés de la couche d'aérosols. Ce tableau est basé sur les données du réseau international AERONET (AErosol RObotic NETwork) composé de plus d'une centaine de photomètres couvrant une grande partie de la planète et servant entre autre à l'étude des aérosols et à la validation satellitaire. En s'appuyant sur le LUT, l'algorithme SCA assigne en fonction de la nature et du type d'aérosol et de surface, des valeurs a priori du facteur de diffusion multiple et du rapport lidar (S_a: aérosol). Les produits CALIOP aérosols sont classés en six catégories: les poussières désertiques (Desert Dust), la fumée provenant de la combustion de la biomasse (Smoke), l'air continental propre (Clean Continental), l'air continental pollué (Polluted Continental), les aérosols marins et la poussière polluée (Polluted Dust). La brume arctique est associée à l'air continental pollué.

Dans le cas de couches nuageuses, l'algorithme SCA détermine la phase thermodynamique des particules (liquide, glace ou mixte) à partir des paramètres du rapport de dépolarisation (δ) et de la température. Les valeurs typiques du rapport de dépolarisation des cristaux de glace sont comprises entre 30 et 50 %. En cas d'ambiguïtés, l'algorithme utilise l'information de la température du sommet du nuage: T_a < -45 °C nuage de

glace, -45 °C < T_a < 0 °C nuage en phase-mixte et T_a > 0 °C nuage en phase liquide. Ensuite, l'algorithme SCA assigne en fonction de la température et du type de nuages, des valeurs a priori du facteur de diffusion multiple et du rapport lidar (S_c: cloud). Par exemple, la valeur moyenne du rapport lidar des nuages de glace est de l'ordre de 25 (Sassen et Comstock, 2001). Le phénomène de diffusion multiple dépend de l'altitude et est pris en compte dans l'algorithme d'inversion de CALIOP avec un facteur ajouté dans l'équation de la transmittance. Dans les nuages de glace, le facteur de diffusion multiple est quasi-constant de l'ordre de 0.6 selon des données in-situ (McFarquhar et al., 1999). L'algorithme SCA est décrit dans la partie 3 du document ATBD : Scene Classification Algorithms (Liu et al., 2005).

Enfin, l'algorithme HERA (Hybrid Extinction Retrieval Algorithms) restitue les profils d'extinction et d'épaisseur optique des couches nuage/aérosol détectés. Cet algorithme utilise les informations déterminées précédemment par les algorithmes SIBYL et SCA (altitudes de la base et du sommet des couches nuageuses ou d'aérosol, rapport lidar initial et facteur de diffusion multiple) pour résoudre l'équation lidar. Le rapport lidar est supposé constant dans la couche. Les valeurs a priori sont réajustées au cours des itérations de l'algorithme HERA afin que la méthode garde une solution convergente. L'algorithme HERA est décrit dans la partie 4 du document ATBD: Extinction Retrieval Algorithm de CALIOP (Young et al., 2008).

A.4 Synergie lidar CALIPSO - radar CloudSat: Algorithme VarCloud

L'algorithme VarCloud permet de restituer les profils du coefficient d'extinction visible (σ_{ext}), du contenu en glace (IWC) et du rayon effectif (R_e) dans les nuages de glace en combinant le coefficient de rétrodiffusion total atténué du lidar CALIPSO (β_{att}) et la réflectivité du radar CloudSat (Z). Cet algorithme est expliqué en détails dans le papier de Delanoë and Hogan (2008, 2010), nous n'en rappellerons que le principe général. Les produits DARDAR-cloud, issus de l'algorithme VarCloud, sont disponibles au centre de données ICARE : http:/www.icare.univ-lille.fr.

L'algorithme VarCloud est basé sur une méthode variationnelle itérative. Il fixe des valeurs a priori à des paramètres choisis pour décrire le système observé. Ensuite il calcule les profils ($\beta_{att,s}$ et Z_s) théoriques à partir de ces trois paramètres à l'aide d'un Look-Up Table et ajuste les valeurs a priori pour que les valeurs $\beta_{att,s}$ et Z_s théoriques correspondent aux β_{att} et Z mesurés. Enfin les profils des propriétés nuageuses sont relevés.

Création de la table de correspondance LUT (Look-Up Table)

Les paramètres initiaux utilisés pour décrire le système observé sont le coefficient d'extinction visible (σ_{ext}), le rapport du lidar (S) et un paramètre N_0' lié au paramètre de concentration normalisée des particules de glace N_0^* par l'équation suivante:

$$N_0' = \frac{N_0^*}{\sigma_{ext}^{0.61}} \tag{A.15}$$

Les paramètres initiaux ont la capacité de prédire les différentes variables à restituer (IWC, $\beta_{att,s}$ et Z_s) à partir de la combinaison de σ_{ext}, N_0' et S. N_0^* est déduit de l'équation A.15, et des LUT (définis ci-dessous) sont utilisés pour relier le rapport σ_{ext}/N_0^* aux variables recherchées (IWC, Z_s). $\beta_{att,s}$ est obtenu avec σ et S.

Le lien physique entre les paramètres nuageux (IWC, σ_{ext}, R_e) et instrumentaux (Z et β_{att}) est la distribution dimensionnelle des particules (PDS). Par analogie avec un nuage d'eau liquide, les PDS des nuages de glace sont formulées en terme de diamètre équivalent fondu (D_{eq}), c'est-à-dire le diamètre qu'aurait la sphère d'eau liquide si on faisait fondre la particule de glace. Le modèle inverse entre les mesures radar/lidar et les propriétés nuageuses inclus donc des propriétés statistiques de la PDS $N(D_{eq})$. Parce que la PDS est extrêmement variable d'un nuage à l'autre et au sein même d'un nuage, sa modélisation est très difficile. Un moyen de réduire cette variabilité est d'utiliser un paramètre normalisé lié à la concentration des particules (N_0^*) sans faire l'hypothèse d'une forme particulière de PDS (Testud et al., 2001; Delanoë et al., 2005). Ce paramètre permet de réécrire la PDS de la glace normalisée sous la forme:

$$N(D_{eq}) = N_0^*.F(\frac{D_{eq}}{D_0^*}) \tag{A.16}$$

avec

$$N_0^* = \frac{M_2^4}{M_3^3} \tag{A.17}$$

et

$$D_0^* = \frac{M_4}{M_3} \tag{A.18}$$

où N_0^* est le facteur normalisé de la concentration, D_0^* est une mesure du diamètre moyen de la distribution, F est la forme de la distribution normalisée des particules. M_x est le moment d'ordre x de la PDS.

À partir d'une vaste base de données microphysiques in-situ, collectées à des altitudes,

des températures, des positions géographiques et des types de nuages glacés différents, et dont les mesures exploitées sont la PDS $N(D)$ provenant de sondes telles que le 2D-C et 2D-P, Delanoë et al. (2005) montrent que la fonction de forme F est invariante quelle que soient les conditions météorologiques, le type de nuage ou la position géographique de ces nuages. On obtient donc N_0^* comme la variable commune aux principaux paramètres instrumentaux et nuageux.

À partir de cette même base de données, la PDS $N(D_{eq})$ normalisée et les moments de la PDS pour chaque spectre ont été calculés. Les différents paramètres instrumentaux (Z) et microphysiques (IWC, N_0^*, σ_{ext}) qui en dépendent peuvent ainsi être calculés suivant un schéma microphysique préalablement défini (ie des relations mass-diamètre-aire etc.). Les particules de diamètre $D \geq 300$ μm suivent les relations densité-D de Brown and Francis (1995) et aire-D de Francis et al (1998), obtenues à partir de la même base de données que Brown and Francis (1995). Les particules de diamètre D $<$ 300 μm suivent les relations densité-aire-D de Mitchell et al. (1990) pour les colonnes hexagonales.

D_{eq} est déterminé via la relation densité-D. L'aire projetée de la particule de glace, pour le calcul de σ_{ext}, est déterminée en fonction de son diamètre maximum via la relation aire-D appropriée. IWC est l'intégration de la distribution de la masse de particules pour chaque classe de diamètre. Pour la réflectivité radar Z, la théorie de Mie est appliquée en supposant que les particules sont homogènes et sphéroïdes.

L'ensemble de ces mesures va permettre de générer des LUT paramétrés par N_0^*, à travers des lois de puissance reliant le paramètre à restituer (Y) et la mesure (X) sous la forme:

$$\frac{X}{N_0^*} = f(\frac{Y}{N_0^*}) \tag{A.19}$$

Comme par exemple:

La réflectivité radar:

$$\frac{Z}{N_0^*} = f(\frac{\alpha}{N_0^*}) \tag{A.20}$$

Le contenu en glace:

$$\frac{IWC}{N_0^*} = f(\frac{\alpha}{N*_0}) \tag{A.21}$$

Le rayon effectif est défini selon l'équation de Foot (1988):

$$R_e = \frac{3}{2\rho}.\frac{IWC}{\sigma_{ext}} \tag{A.22}$$

Lorsque l'un des deux signaux du lidar ou radar est indisponible, des calculs exacts sont toujours possibles en utilisant un a priori pour compenser le manque d'information.

APPENDICE B

MODÈLE ATMOSPHÉRIQUE FLEXPART

B.1 Description du modèle

FLEXPART est un modèle lagrangien de dispersion des particules permettant la modélisation et l'analyse de transports atmosphériques telle que l'analyse de l'origine des masses d'air par rétrotrajectoires (Stohl et al., 1998, 2005). Il calcule les trajectoires d'une quantité infinitésimale de petites parcelles d'air pour décrire le transport et la diffusion de traceurs dans l'atmosphère en prennant en compte la diffusion, les dépositions sèche et humide et la convection (version 6.2 de FLEXPART). Une description détailée du modèle et des paramétrisations utilisées sont donnés dans Stohl et al. (2005). Nous ne rappelerons que les principales paramétrisations physiques du modèle FLEXPART.

B.2 Physique du modèle

B.2.1 Hauteur de la CLA

La hauteur de la CLA est calculée en utilisant le nombre de Richardson (R_i) qui est le rapport du terme de flottabilité sur le terme de cisaillement (Vogelezang et Holtslag, 1996):

$$R_i = \frac{flottabilite}{cisaillement} = \frac{(\frac{g}{\overline{\Theta_v}})\overline{w'\Theta'_v}}{\overline{u'_i u'_j}\frac{\partial \overline{u_i}}{\partial x_j}} \tag{B.1}$$

où g est la constante gravitationnelle (9.81m.s^{-2}), Θ_v est la température potentielle virtuelle en (K), w la vitesse verticale en (m.s^{-1}), et $u_{i,j}$ sont les composantes du vent (m.s^{-1}). Dans FLEXPART, la hauteur de la CLA correspond à la hauteur de la première couche verticale dans laquelle R_i excède la valeur critique de 0.25 ($R_i > 0$ Stable; $R_i = 0$ Neutre; $R_i < 0$ Instable).

B.2.2 Calcul de la trajectoire des particules

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:

$$X(t + \Delta t) = X(t) + v(X, t)\Delta t \tag{B.2}$$

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

$$\frac{dX}{dt} = v[X(t)] \tag{B.3}$$

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

B.2.3 Vent turbulent

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

$$dv_{t_i} = a_i(x, v_t, t)dt + b_{i,j}(x, v_t, t).dW_j \tag{B.4}$$

où le terme de dérive 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 d_t (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 à 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 :

$$dw = -w\frac{dt}{\tau L_w} + \frac{\partial \sigma_w^2}{\delta z}dt + \frac{\partial \sigma_w^2}{\rho}\frac{\partial \rho}{\partial z}dt + \left(\frac{2}{\tau L_w}\right)^{\frac{1}{2}} \sigma_w d_W \tag{B.5}$$

où w et σ_w sont respectivement la composante verticale du vent turbulent et son écart type associé. Le deuxième et le troisième terme sont la correction de dérive et de la densité de l'air, respectivement.

B.2.4 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 fournie les informations de flux de masse, nécessaires à la redistribution des particules. Cette paramétrisation est déclenchée en fonction des champs de précipitation des réanalyses ECMWF (European Centre for Medium-Range Weather Forecasts).

B.3 Données météorologiques et architecture

Dans le cadre de cette thèse, la version de FLEXPART utilise les réanalyses météorologiques ECMWF converties au format GRIB2 (Gridded binary), avec des résolutions spatiale de 1x1 et temporelle de 3h. Ces champs fournissent des informations sur des variables atmosphériques nécessaires au fonctionnement du modèle, telles que les champs de vent horizontaux et verticaux, l'humidité spécifique, la température, la pression en surface, la température du point de rosé, la couverture nuageuse, les précipitations, la rayonnement solaire, le flux de chaleur sensible ou encore la topographie.

Cinq fichiers d'entrées sont à configurer selon les applications désirées. 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.

B.4 Trajectographie

FLEXPART peut être utilisé en mode forward afin de simuler la dispersion de traceurs à partir de leurs sources, ou en mode backward afin de déterminer la contribution des sources potentielles pour un récepteurs donnés. Les particules sont libérés à partir d'une ou plusieurs sources et les concentrations sont déterminés sous le vent sur la grille. Le mode backward est moins efficace que le mode forward pour le calcul de la 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'une des deux options forward ou 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. Les ≪Releases≫ 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 entre 1000 et 7500 mètres, i.e. 13 tranches d'altitude de 500 mètres). FLEXPART nous permet de faire plusieurs lâchés simultanés sur différents niveaux sur la zone choisie.

Ensuite Flexpart calcule la position des particules, relachées à partir des points de release, toutes les quinze minutes (mode forward ou backward). Les particules sont regroupées en cinq clusters en fonction de leur proximité géographique. Ainsi des (rétro)trajectoires pouvent-être établies en montrant les positions des clusters à différentes échéances temporelles. La fiabilité de la (rétro)trajectoire est d'autant plus grande que pour une échéance temporelle donnée la distance entre les clusters est faible. La Figure **??** montre un exemple de rétrotrajectoire effectuée à partir de la release entre 3500 et 4000 mètres à 71.5 °N sur une spirale du vol F21 ISDAC (Figure B.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 montré par la ligne colorée représentant l'altitude de la release.

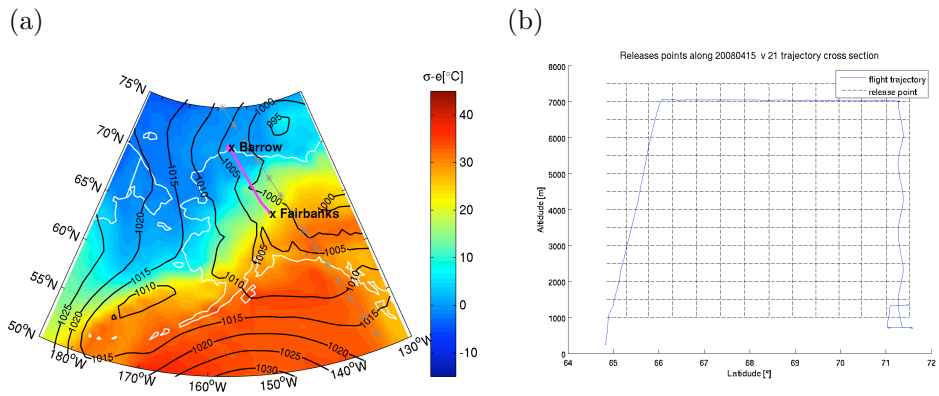

Figure B.1 Point géographique (marqué d'une étoile sur la figure (a) et d'un trait tireté (b)) où sont relachées 2000 particules le long de la trajectoire d'avion, entre 1000 et 7500 mètres tous les 500 mètres, dans une zone de 0.5 x 0.5 ° pour le vol F21 du 15 avril 2008.

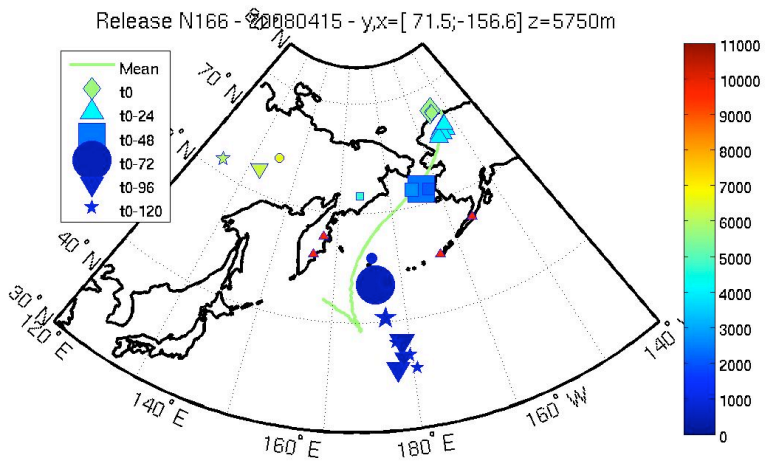

Figure B.2 Rétrotrajectoires à partir des simulations FLEXPART initialisées le 15 avril 2008 à 01:16:00 UTC à 71.5 °N; 156.6 °W entre 5500-6000 m. Les clusters de particules sont représentés toutes les 24 h à partir du début de la simulation. La colorbar représente l'altitude des clusters en mètres.

APPENDICE C

MESURE DU SO_2 PAR LE SPECTROMÈTRE OMI DE EOS-AURA

C.1 Spectromètre OMI à bord du satellite EOS-Aura

OMI (Levelt et Noordhoek, 2002) est un spectromètre de visée au nadir embarqué sur le satellite EOS-Aura qui a rejoint la constellation de satellites de l'A-Train (Afternoon Train) en juillet 2004. Il combine les avantages de ses prédécesseurs (GOME, SCIAMACHY, TOMS) en mesurant le rayonnement rétrodiffusé par l'atmosphère et la surface de la Terre sur toute la gamme de longueurs d'onde UV-Visible (270 à 500 nm), avec une résolution spectrale d'environ 0.5 nm et une haute résolution spatiale de 13 km x 24 km. En raison de son large champ de vision de 114 °, la longueur de l'empreinte de OMI est de 2600 km, permettant de fournir quotidiennement une couverture globale (Figure C.1). OMI contribue à la surveillance de l'ozone, des gaz traces polluants dont le dioxyde de soufre (SO_2), des aérosols et du rayonnement UV.

C.2 Densités de colonne oblique et verticale.

La comparaison du spectre de lumière mesuré par le satellite avec le spectre de la lumière du soleil lui-même fournit des informations sur la distribution et la concentration des gaz traces qui absorbent ou dispersent une partie de la lumière solaire incidente (au lieu d'utiliser le spectre solaire pour cette comparaison, on peut aussi utiliser un spectre de lumière d'une partie de l'atmosphère dépourvue du gaz trace recherché).

La concentration du gaz trace sur l'ensemble du trajet optique est appelé la densité de colonne oblique (SCD pour Slant Column Density). Elle ne donne pas la concentration totale du gaz trace au-dessus de l'empreinte E, c'est à dire le long de la ligne bleue sur la Figure C.2. La concentration totale le long de cette ligne est appelée la densité de colonne verticale (VCD pour Vertical Column Density). Le rapport entre ces deux densités est appelé le facteur de masse d'air (AMF pour Air Mass Factor):

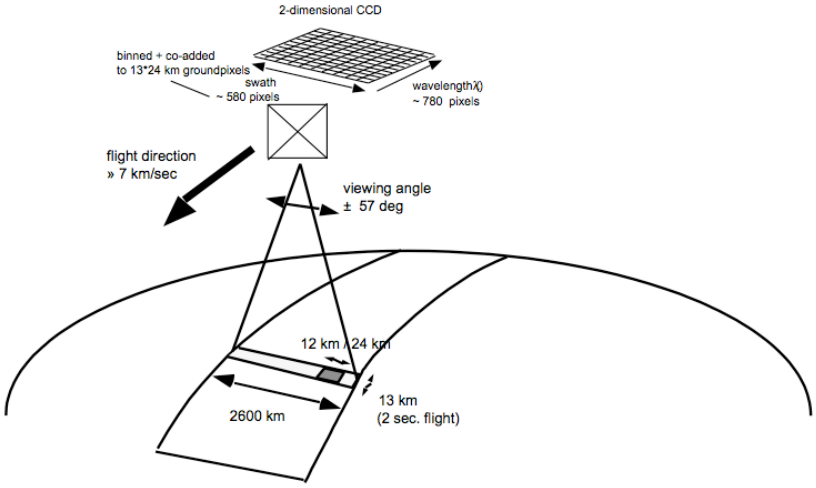

Figure C.1 Principe de mesure d'OMI (Levelt et Noordhoek, 2002).

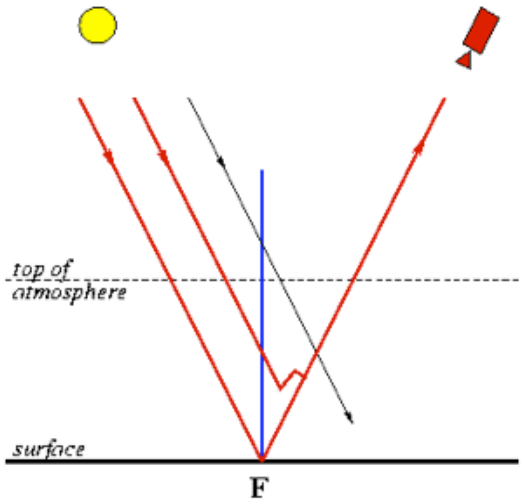

Figure C.2 Représentation schématique de la voie oblique (lignes rouges) de la lumière solaire à travers l'atmosphère de la Terre vers le satellite, associée à l'empreinte E (Surface de la terre pointée par le satellite). La ligne bleue représente la «colonne verticale» au-dessus de l'empreinte E

(http://sacs.aeronomie.be/info/SCDVCD.php)

$$AMF = SCD/VCD \tag{C.1}$$

La valeur du AMF dépend de nombreux paramètres dont la longueur du trajet optique, l'Angle Zénithal Solaire (AZS), la distribution verticale du gaz trace, l'albédo de surface, etc. Ce terme est pré-déterminé avec un modèle de transfert radiatif afin de calculer la densité (totale) de colonne verticale de SO_2. VCD SO_2 est exprimée en unités Dobson (DU pour Dobson Unit), sachant que 1 DU vaut 2,69 x 1016 molécules.cm^{-2}.

Pour les mesures OMI, les produits SO_2 de la couche limite planétaire sont déterminés selon l'algorithme BRD (Band Residual Difference) (Krotkov et al., 2006). Les produits de SO_2 aux autres altitudes sont déterminés selon l'agorithme LF (Linear Fit) (Yang et al., 2007).

C.3 Aperçu de l'algorithme BRD (Band Residual Difference)

L'algorithme BRD restitue la densité SCD SO_2 dans la couche limite planétaire à partir des mesures OMI de la luminance terrestre (l) et de l'éclairement solaire (F) dans l'UV entre 310,8 et 314,4 nm. Dans cette gamme de λ, les gaz traces SO_2 et O_3 présentent tous les deux des caractéristiques d'absorption (voir Figure C.3). Le défi dans la restitution du SO_2 est de distinguer ses effets d'absorption de ceux de l'O_3.

L'algorithme BRD (Krotkov et al., 2006) suppose que le logarithme du rapport des reflectances spectrales pour de paires de λ peut-être approximé comme suit:

$$N_j = k.AMF.(\alpha_j \Omega_0 + \gamma_j \Sigma_0) + biais \tag{C.2}$$

avec Ω_0 et Σ_0 les densités VCD de O_3 et de SO_2; α_j et γ_j les coefficients d'absorption différentiels de O_3 et de SO_2 à température constante (Tab. C.1);

$$N_j = N(\lambda_j^{courte}) - N(\lambda_j^{longue}) \tag{C.3}$$

et

$$N = -100.log_{10}(\frac{I}{F}) \tag{C.4}$$

les valeurs N-paires mesurées aux trois paires j=1,2,3 de λ du tableau C.1; et k un facteur d'échelle.

L'algorithme BRD utilise les valeurs restitutées de la densité VCD d'O_3 de l'algorithme

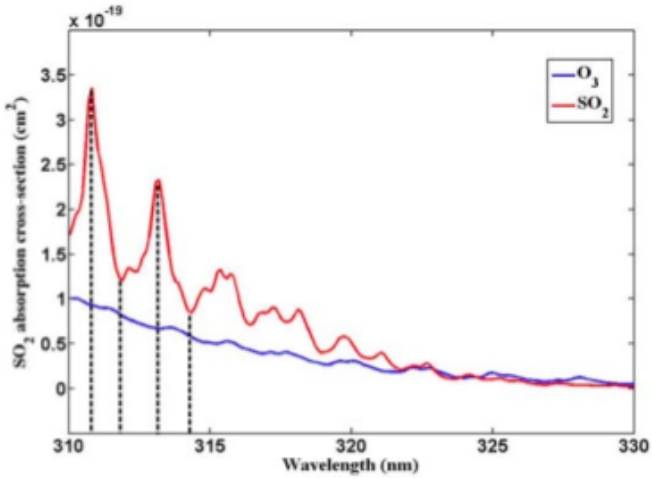

Figure C.3 Spectre d'absorption des gaz O_3 et SO_2 dans la bande UV. Les lignes noires en pointillées représentent les quatre longueurs d'onde (310.8, 311.9, 313.2 et 314.4 nm) utilisées pour la restitution de la densité de SO_2 dans l'algorithme BRD.

Pair	λ^{short} - λ^{long}, [nm]	Pair differential absorption coefficients [atm-cm^{-1}]	
		Ozone: α_j	SO_2: γ_j
P_1	310.8 - 311.9	0.29	5.65
P_2	311.9 - 313.2	0.34	-3.3
P_3	313.2 - 314.4	0.27	4.16

Table C.1 Coefficients d'absorption selon les différentes pairs de λ.

$OMTO_3$ (Barthia et Wellemeyer, 2002) (en supposant la quantité de SO_2 nulle) pour calculer les valeurs N résiduelles aux trois paires de λ de SO_2 (Tab. C.1). Les résidus sont définis comme la différence entre les valeurs N-paire mesurée ($N^{\text{mesuré}}{}_j$ - Éq. C.4) et les valeurs N-paires calculées ($N^{\text{calculé}}{}_j$ - Éq. C.2)

$$res_j = N^{\text{mesuré}}{}_j - N^{\text{calculé}}{}_j \tag{C.5}$$

À partir des équations C.2 et C.5, et en connaisant la densité SCD d'O_3 ainsi que les coefficients d'absorption des deux gaz traces, on en déduit la densité SCD de SO_2 pour chacune des trois N-paires. La moyenne des trois produits donne la vraie valeur

SCD de SO_2. L'utilisation des valeurs-paires permet d'annuler les erreurs systématiques indépendantes des λ et de réduire les erreurs dépendantes aux λ en sélectionnant une paire de longueurs d'onde proches. L'avantage de l'algorithme BRD est qu'il utilise des paires de λ centrées sur les minimas et maximas des sections efficaces d'absorption du SO_2 entre 310.8 et 314.4 nm ce qui optimise la sensibilité de détection des profils verticaux de SO_2 de faible densité.

Les fortes concentrations de SO_2, produitent par un dégazage ou une éruption volcanique par exemple, peuvent donner des réponses aux valeurs N résiduelles non-linéraire avec la quantitié de SO_2. L'algorithme (LF) a été développé pour traiter ces cas.

C.4 Aperçu de l'algorithme LF (Linear Fit)

L'algorithme LF (Yang et al., 2007) minimise les résidus en décalant les paires de longueurs d'onde dans des régions d'absorption plus faible et en ajustant simultanément certains paramètres telsque le contenu en SO_2, en O_3 etc. Cependant, l'algorithme LF est limité à des concentrations de SO_2 ne dépassant pas 100 DU, avec une incertitude globale d'environ 20 %.

C.5 Détermination du facteur de masse d'air (AMF pour Air-Mass Factor)

La valeur de l'AMF dépend de nombreux paramètres dont la longueur du trajet optie, l'AZS, la distribution verticale du gaz traces, l'albédo de surface, etc. Pour la distribution verticale, un profil a priori de SO_2 est utilisée, sur une base de concentrations réalistes. En présence de nuages, les mesures satellitaires fournissent une SCD contenant seulement des informations sur l'atmosphère au-dessus des nuages. Pour corriger cette situation, un AMF «effectif» est calculé en prenant en compte la fraction nuageuse.

Ainsi l'AMF est pré-calculé avec le modèle de transfert radiatif LIDORT sous la forme d'une table de correspondance (Look-up Table) avec un ensemble de données en entrée dont la date, l'AZS, l'albédo de surface, la fraction nuageuse, la pression au sommet des nuages, etc. Un profil a priori de SO_2 est choisi en fonction de la valeur du SCD de SO_2. L'AMF dépend aussi de la hauteur et de l'épaisseur du panache de SO_2. Dans la table de correspondance, il a été supposé que l'épaisseur de la plume est de 1 km, mais parce qu'il n'existe pas d'information sur la hauteur du panache de SO_2, il a été décidé d'effectuer la restitution de la valeur VCD selon trois altitudes différentes.

Ainsi pour chaque scène, les produits OMI fournissent 4 estimations de la densité VCD de SO_2 selon différentes hypothèses sur la distribution verticale du SO_2:

- La densité VCD SO_2 dans la couche limite planétaire (PBL) (ColumnAmountSO2_PBL), produites par des activités anthropiques, et correspondante à l'altitude du centre de masse (CMA pour Center Air Mass) de 0,9 km.

- La densité VCD SO_2 dans la couche limite planétaire dans la basse troposphère (ColumnAmountSO2_TRL), correspondante à un CMA de 2,5 km.

- La densité VCD SO_2 dans la couche limite planétaire dans la moyenne troposphère (ColumnAmountSO2_TRM), généralement produites par les dégazages volcaniques, et correspondante à un CMA de 7,5 km.

- La densité VCD SO_2 dans la couche limite planétaire dans la haute colonne troposphére et stratosphère (ColumnAmountSO2_STL), généralement produites par une éruption volcanique explosive, et correspondante à un CMA de 17 km.

BIBLIOGRAPHIE

ACIA. (2005). Impacts of a warming Arctic: Arctic Climate Impact Assessment. *Cambridge University Press.*

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

Adam de Villiers, R. (2010b). Analyse des propriétés optiques des aérosols observés en Arctique pendant la campagne de printemps de l'API/POLARCAT. Thèse de doctorat. *Université Pierre et Marie Curie.*

Adams, P.J., J.H. Seinfeld, and D.M. Koch. (1999). Global concentrations of tropospheric sulfate, nitrate, and ammonium aerosol simulated in a general circulation model. *J. Geophys. Res.* 104(D11). 13. 791-13823.

Albrecht, B.A. (1989). Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness. *Science.* 245 (4923): 1227-30.

Atkinson, D.E., K. Sassen, M. Hayashi, C.F. Cahill, G. Shaw, D. Harrigan, and H. Fuelberg. (2011). ARCTAS-A ground-based observational campaign and meteorological context, interior Alaska, April 2008. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* 11. 16499-16552.

Austin, R.T. (2007). Level 2B Radar-only Cloud Water Content (2B-CWC-RO) Process Description Document, version 5.1.

Bailey, M.P., and J. Hallett. (2004). Growth rates and habits of ice crystals between -20° and -70°C. *J. Atmos. Sci.* 61. 514–554.

Bailey, M.P., and J. Hallett. (2009). A Comprehensive Habit Diagram for Atmospheric Ice Crystals: Confirmation from the Laboratory, AIRS II, and Other Field Studies. *J. Atmos. Sci.* 66. 2888–2899.

Baker, B.A., and R.P. Lawson. (2006a). In Situ Observations of the Microphysical Properties of Wave, Cirrus, and Anvil Clouds. Part I: Wave Clouds. *J. Atmos. Sci.* 63. 3160–3185.

Baker, B.A., and R.P. Lawson. (2006b). Improvement in Determination of Ice Water Content from Two-Dimensional Particle Imagery. Part I: Image-to-Mass Relationships. *J. Appl. Meteor. Climatol.* 45. 1282–1290.

Barrie, L.A., and M.J. Barrie. (1990). Chemical Components of Lower Tropospheric Aerosols in the High Arctic: Six Years of Observations. *J. Atmos. Chem.* 11(3). 211-226.

Barthia, P. and Wellemeyer, W., 2002. "TOMS-V8 total ozone algorithm" in OMI Algorithm Theoretical Basis Document, OMI Ozone Products.

Baumgardner, D., H. Jonsson, W. Dawson, D. O'Connor, and R. Newton. (2001). The cloud, aerosol and precipitation spectrometer: a new instrument for cloud investigations. *Atmos. Res.* 59–60. 251-264.

Bigg, E.K. (1980). Comparison of aerosol at four baseline atmospheric monitoring stations. *J. Appl. Meteor.* 19. 521-533.

Blanchard, Y. (2011). Analyse du potentiel de la radiométrie infrarouge thermique pour la caractérisation des nuages de glace en Arctique. Thèse de Doctorat. *Université de Sherbrooke.*

Blanchet, J.-P., and E. Girard. (1994). Arctic greenhouse cooling. *Nature.* 371. 383.

Bohren, C.F. and D.R. Huffman. (1983). Absorption and Scattering of Light by Small Particles. *John Wiley & Sons.*

Borys. (1989). Studies of ice nucleation by arctic aerosols on AGASP-II. *J. Atmos. Chem.* 9. 169-185.

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

Brown, P.R.A., and P.N. Francis. (1995). Improved measurements of the ice water content in cirrus using a total-water probe. *J. Atmos Ocean. Tech.* 12. 410-414.

Burton, S.P., R.A. Ferrare, C.A. Hostetler, J.W. Hair, R.R. Rogers, M.D. Obland, C.F. Butler, A.L. Cook, D.B. Harper, and K.D. Froyd. (2011). Aerosol classification using airborne High Spectral Resolution Lidar measurements – methodology and examples. *Atmos. Meas. Tech. Discuss.* 4. 5631-5688.

Campbell, J. R., D.L. Hlavka, E.J. Welton, C.J. Flynn, D.D. Turner, J.D. Spinhirne, V.S. Scott and, I.H. Hwang. (2002). Full-time eye-safe cloud andaerosol lidar observations at Atmospheric Radiation Measurement Program sites: Instruments and data processing. *J. Atmos. Ocean. Tech.* 19(4) 431-442.

Carn, S.A., A.J. Krueger, N.A. Krotkov, K. Yang, and P.F. Levelt. (2007). Sulfur dioxide emissions from Peruvian copper smelters detected by the Ozone Monitoring Instrument. *Geophys. Res. Lett.* 34. L09801.

Chapman, W.L., and J.E. Walsh. (2007). Simulations of Arctic temperature and pressure by global coupled models. *J. Climatol.* 20. 609–632.

Chernoff, D.I., and A.K. Bertram. (2010). Effects of sulfate coatings on the ice nucleation properties of a biological ice nucleus and several types of minerals. *J. Geophys. Res.* 115.

Chin, M., D.J., Jacob, G.M. Gardner, M.S. Foreman-Fowler, and P.A., Spiro. (1996). A global three-dimensional model of tropospheric sulfate. *J. Geophys. Res.* 101. 18,667-18,690.

Chin, M., R.B. Rood, S.-J. Lin, J.-F. Müller, and A.M. Thompson. (2000). Atmospheric sulfur cycle simulated in the global model GOCART: Model description and global properties. *J. Geophys. Res.* 105(D20). 24671-24687.

Christensen, J.H. (1997). The Danish Eulerian hemispheric model - a three-dimensionaJ air pollution model used for the Arctio. *Atmos. Envir.* 31(24), 4169-4191.

Cober, S.G., G.A. Isaac, and A.V. Korolev. (2001). Assessing the Rosemount icing detector with in situ measurements. *J. Atmos. Ocean. Tech.* 18(4). 515-528.

Côté J., S. Gravel, A. Méhot, A. Patoine, M. Roch, and A. Staniforth. (1998). The operational CMC-MRB Global Environmental Multiscale (GEM) Model. Part I. Design considerations and formulation. *Monthly Weather Review.* 126. 1373–1395.

Curry, J.A., J.L. Schramm, W.B. Rossow, D. Randall. (1996). Overview of Arctic Cloud and Radiation Characteristics. *J. Climate.* 9. 1731–1764.

Delanoë, J., A. Protat, J. Testud, D. Bouniol, A.J. Heymsfield, A. Bansemer, P.R.A. Brown, and R.M. Forbes. (2005). Statistical properties of the normalized ice particle size distribution. *J. Geophys. Res.* 110. D10201.

Delanoë, J., and R.J. Hogan. (2008). A variational scheme for retrieving ice cloud properties from combined radar, lidar and infrared radiometer. *J. Geophys. Res.* 113. D07204.

Delanoë, J., and R.J. Hogan. (2010). Combined CloudSat-CALIPSO- MODIS retrievals of the properties of ice clouds. *J. Geophys. Res.* 115. D00H29.

Delanoë, J., A. Protat, O. Jourdan, J. Pelon, M. Papazzoni, R. Dupuy, J.F. Gayet, and C. Jouan. (2012). Comparison of airborne in-situ, airborne radar-lidar, and spaceborne radar-lidar retrievals of polar ice cloud properties sampled during the POLARCAT campaign. *J. Atmos. Ocean. Technol.* 117. D23207.

Delmas R., Mégie G. et Peuch V.-H. (2005). Physique et chimie de l'atmosphère. *Belin.*

Devasthale, A., M. Tjernström, K.-G. Karlsson, M.A. Thomas, C. Jones, J. Sedlar, and A.H. Omar. (2010). The vertical distribution of thin features over the Arctic analysed from CALIPSO observations: Part I: Optically thin clouds. *Tellus B.* 63. 77–85.

Di Pierro L., and J. Lyatt. (2012). The spatial and temporal distribution of Arctic aerosols as seen from the CALIPSO satellite (2006–2012). *AGU Fall Meeting. San Francisco. USA. Poster.*

Dufresne, J.-L., and S. Bony. (2008). An assessment of the primary sources of spread of global warming estimates from coupled atmosphere-ocean models. *J. Climate.* 21. 5135-5144.

Dunlea, E.J., P.F. DeCarlo, A.C. Aiken, J.R. Kimmel, R.E. Peltier, R.J. Weber, J.Tomlinson, D.R. Collins, Y. Shinozuka, C.S. McNaughton, S.G. Howell, A.D. Clarke, L.K. Emmons, E.C. Apel, G.G. Pfister, A. van Donkelaar, R.V. Martin, D.B. Millet, C.L. Heald, J.L. Jimenez. (2009). Evolution of Asian aerosols during transpacific transport in INTEX-B. *Atmos. Chem. Phys.* 9. 7257-7287.

Dye, J.E., D. Baumgardner. (1984). Evaluation of the Forward Scattering Spectrometer Probe. Part I: Electronic and Optical Studies. *J. Atmos. Oceanic Technol.* 1. 329–344.

Dymarska, M. (2005). Ice nucleating properties of soot, kaolinite, and goethite at conditions relevant for the lower troposphere. *University of British Columbia.*

Eastwood M.L., S. Cremel, M. Wheeler, B.J. Murray, E. Girard, A.K. Bertram. (2008). Ice nucleation on mineral dust particles: onset conditions, nucleation rate and contact angles. *J. Geophys. Res.* 113. D22203.

Eastwood, M. L., S. Cremel, M. Wheeler, B. J. Murray, E. Girard, and A. K. Bertram. (2009). Effects of sulfuric acid and ammonium sulfate coatings on the ice nucleation properties of kaolinite particles. *Geophys. Res. Lett.* 36. L02811.

Eguchi, K., I. Uno, K. Yumimoto, T. Takemura, A. Shimizu, N. Sugimoto and Z. Liu. (2009). Transpacific dust transport: integrated analysis of NASA/CALIPSO and a global aerosol transport model. *Atmos. Chem. Phys.* 9. 3137–3145.

Emanuel, K.A., M. ?ivkovi?-Rothman. (1999). Development and Evaluation of a Convection Scheme for Use in Climate Models. *J. Atmos. Sci.* 56. 1766–1782.

Field, P.R., A.J. Heymsfield, and A. Bansemer. (2006). Shattering and Particle Interarrival Times Measured by Optical Array Probes in Ice Clouds. *J. Atmos. Ocean. Technol.* 23. 1357-1371.

Fisher, J.A., Jacoba, D.J., Wanga, Q., Bahreinib, R., Carougea, C.C., Cubisonb, M.J., Dibbe, J.E., Diehlf, T., Jimenezb, J.L., Leibenspergera, E.M., Meindersh, M.B.J., Pyei, H.O.T., Quinnj, P.K., Sharmak, S., Van Donkelaarl, A., and Yantoscaa, R.M. (2011), Sources, distribution, and acidity of sulfate-ammonium aerosol in the Arctic in winter-spring, *J. Atmos. Env.* 45(39). 7301-7318.

Fletcher NH. (1962). Physics of Rain Clouds. *Cambridge University Press: London.*

Foot, J.S. (1988). Some observations of the optical properties of clouds II: Cirrus. *Q.J.R. Meteorol. Soc.*. 114. 145-1647.

Francis, P., P. Hignett, and A. Macke. (1998). The retrieval of cirrus cloud properties from aircraft multi-spectral reflectance measurements during EUCREX '93. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 124. 1273–1291.

Fuelberg, H.E., D.L. Harrigan, and W. Sessions. (2010). A meteorological overview of the ARCTAS 2008 mission. *Atmos. Chem. Phys.* 10. 817-842.

Garnier, A., J. Pelon, P. Dubuisson,P. Yang, M. Faivre, O. Chomette, P. Lucker. (2013) Retrieval of cloud properties using CALIPSO Imaging Infrared Radiometer. Part II: effective diameter and ice water path. *J. Appl. Meteor. Climatol.* submitted.

Garnier, A., J. Pelon, P. Dubuisson, M. Faivre, O. Chomette, N. Pascal, D. P. Kratz. (2012). Retrieval of cloud properties using CALIPSO Imaging Infrared Radiometer. Part I: effective emissivity and optical depth. *J. Appl. Meteor. Climatol.* 51 (7). 1407-1425.

Gayet, J.-F., F. Auriol, A. Minikin, J. Ström, M. Seifert, R. Krejci, A. Petzol, G. Febvre, and U. Schuman. (2002). Quantitative measurement of the microphysical and optical properties of cirrus clouds with four different in situ probes: Evidence of small crystals. *Geophys. Res. Let.* 29(24). 2230-2233.

Giannakaki, E., D. Balis and V. Amiridis. (2012). Vertical Separation of Aerosol Types Using of CALIPSO Level-2 Products. *Springer Atmos. Sci.* Part 3. 981-986.

Girard, E.. (1998). Étude d'un effet indirect des aérosols acides en Arctique: Le cycle de déshydratation. Thèse de Doctorat. *Université de McGill.*

Girard, E., and J.P. Blanchet. (2001). Simulation of Arctic diamond dust and ice fog or thin stratus using an explicit aerosol-cloud-radiation model. *J. Atmos. Sci.* 58(10). 1199-1221.

Girard, E., J.-P. Blanchet, et Y. Dubois. (2005). Effects of sulphuric acid aerosols on wintertime low-level atmospheric ice crystals, humidity, and temperature at Alert, Nunavut. *J. Atmos. Res.* 73. 131-148.

Girard, E. and A. Stefanof. (2007). Assessment of the dehydration-greenhouse feedback over the Arctic during February 1990. *Int. J. of Climatol.* 27. 1047–1058.

Girard, E., G. Dueymes, P. Du and A.K. Bertram (2012). Assessment of the Effects of Acid-Coated Ice Nuclei on the Arctic Cloud Microstructure, Atmospheric Dehydration, Radiation and Temperature during Winter. *Int. J. of Climatol.* doi: 10.1002/joc.3454.

Grenier, P., J.P. Blanchet and, R. Munoz-Alpizar. (2009). Study of polar thin ice clouds and aerosols seen by CloudSat and CALIPSO during mid-winter 2007. *J. Geophys. Res.* 114. D09201.

Grenier, P. and, J.P. Blanchet. (2010), Investigation of the sulphate-induced freezing inhibition effect from CloudSat and CALIPSO measurements. *J. Geophys. Res.* 115. D22205.

Gultepe, I., and D. O'C. Starr. (1995). A comparison of evaporative cooling with infrared heating beneath a cirrus cloud. *J. Atmos. Res.*. 35. 217-231.

Gultepe, I., G.A. Isaac and S.G. Cober. (2001). Ice crystal number concentration versus temperature for climate studies. *Int. J. Climatol.* 21(10). 1281–1302.

Hansen, J., R. Ruedy, Mki. Sato, and K. Lo, (2010). Global surface temperature change. *Rev. Geophys.* 48. RG4004.

Harrigan, D. L., H.E. Fuelberg, I.J. Simpson, D.R. Blake, G.R. Carmichael and G.S. Diskin. (2011). Anthropogenic emissions during Arctas-A: mean transport characteristics and regional case studies. *Atmos. Chem. Phys.* 11. 8677-8701.

He, H., C. Li, C.P. Loughner, Z. Li, N.A. Krotkov, K. Yang, L. Wang, Y. Zheng, X. Bao, G. Zhao, and R.R. Dickerson. (2012). SO2 over central China: Measurements, numerical simulations and the tropospheric sulfur budget. *J. Geophys. Res.* 117. D00K3.

Hess, M., R. Koelemeijer, and P. Stammes. (1998a). Scattering matrices of imperfect hexagonal ice crystals. *J. of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer.* 60. 301– 308,

Hess, M., P. Koepke, and I. Schult. (1998b). Optical properties of aerosols and clouds: The software package OPAC. *Bull. of the American Meteor. Soc..* 79. 831– 844.

Heymsfield, A. J., S. Lewis, A. Bansemer, J. Iaquinta, L.M. Miloshevich, M. Kajikawa, C. Twohy, and M.R. Poellot. (2002). A general approach for deriving the properties of cirrus and stratiform ice cloud particles. *J. Atmos. Sci.* 59. 3–29.

Hirdman, D., J.F. Burkhart, H. Sodemann, S. Eckhardt, A. Jefferson, P.K. Quinn, S. Sharma, J. Ström, and A. Stohl. (2010). Long-term trends of black carbon and sulphate aerosol in the Arctic: changes in atmospheric transport and source region emissions. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* 10. 12133-12184.

Hoose, C. and O. Möhler. (2012). Heterogeneous ice nucleation on atmospheric aerosols: A review of results from laboratory experiments *Atmos. Chem. and Phys.* 12. 9817-9854.

Intrieri, J.M., C.W. Fairall, M.D. Shupe, P.O.G. Persson, E.L. Andreas, P. Guest, and

R.M. Moritz. (2002). An anual cycle of Arctic surface cloud forcing at SHEBA. *J. Geophys. Res.* 107. 8039.

Intrieri, J.M., and M.D. Shupe. (2004). Characterization and radiative effects of diamond dust of the Western Arctic Ocean region. *J. Climate.* 17. 2953-2960.

IPCC (2001). climate change 2001: Third assessment report. The scientific basis.

IPCC. (2007). Climate Change 2007: Fourth assessment report.. The Physical Science Basis. *Cambridge University Press.*

Jackson, R.C., G.M. McFarquhar, A.V. Korolev, M.E. Earle, P.S.K. Liu, R.P. Lawson, S. Brooks, M. Wolde, A. Laskin, and M. Freer. (2012). The dependence of ice microphysics on aerosol concentration in arctic mixed-phase stratus clouds during ISDAC and M-PACE. *J. Geophys. Res.* 117. D15207.

Jacob, D.J., J.H. Crawford, H. Maring, A.D. Clarke, J.E. Dibb, L.K. Emmons, R.A. Ferrare, C.A. Hostetler, P.B. Russell, H.B. Singh, A.M. Thompson, G.E. Shaw, E. McCauley, J.R. Pederson and J.A. Fisher. (2010). The Arctic research of the composition of the troposphere from aircraft and satellites (ARCTAS) mission: design, execution, and first results. *Atmos. Chem. and Phys.* 10. 5191-5212.

Jayaweera, K. and, P. Flanagan(1982), Investigations on biogenic ice nuclei in the Arctic atmosphere. *Geophys. Res. Lett..* 9. 94–97

Jensen, E.J., P. Lawson, B. Baker, B. Pilson, Q. Mo, A.J. Heymsfield, A. Bansemer, T.P. Bui, M. McGill, D. Hlavka, G. Heymsfield, S. Platnick, G.T. Arnold, and S. Tanelli. (2009). On the importance of small ice crystals in tropical anvil cirrus. *Atmos. Chem. Phys.* 9. 5519-5537.

Jouan, C., E. Girard, J. Pelon, I. Gultepe, J. Delanoë and J.P. Blanchet. (2012). Characterization of Arctic ice cloud properties observed during ISDAC. *J. Geophys. Res.* 117. D23207.

Kay, J. E., and T. L'Ecuyer. (being revised). Observational constraints on Arctic Ocean clouds and radiative fluxes during the early 21st century. *J. Geophys. Res.*

Kellogg, C.A. and D.W. Griffin. (2006). Aerobiology and the global transport of desert dust. *Trends in Ecology and Evolution.* 21(11). 638-644.

Khokhar, M.F., C. Frankenberg, M. Van Roozendael, S. Beirle, S. Kühl, A. Richter, U. Platt, and T. Wagner. (2005). Satellite observations of atmospheric SO2 from volcanic eruptions during the time-period of 1996–2002. *Adv. Space Res.* 36. 879–887.

King, W.D., D.A. Parkin, and R.J. Handsworth. (1978). A Hot-Wire Liquid Water Device Having Fully Calculable Response Characteristics. *J. Appl. Meteor.* 17. 1809–1813.

Khoder, M.J. (2002). Atmospheric Conversion Of Sulfur Dioxide To Particulate Sulfate And Nitrogen Dioxide To Particulate Nitrate And Gaseous Nitric Acid In An Urban Area. *Chemosphere.* 49. 675-684.

Klotsvog, F.N., A.B., Sukhotin, L.S., Chernova. (2009). Forecast of economic growth in Russia, Belarus, Kazakhstan, and Ukraine within the unified economic space. *Studies on Russian Economic Development.* 20. 366-372.

Korolev, A.V., J.W. Strapp, and G.A. Isaac. (1998). Evaluation of the Accuracy of PMS Optical Array Probes. *J. Atmos. Ocean. Tech.* 15. 708–720.

Korolev, A.V., and I.P. Mazin. (2003). Supersaturation of Water Vapor in Clouds. *J. Atmos. Sci.* 60. 2957–2974.

Korolev, A.V., and G.A. Isaac. (2004). Observation of sublimating ice particles in clouds. Preprints. *14th Int. Conf. on Clouds and Precipitation. Bologna. Italy. ICCP and IAMAS.* 808–812.

Korolev, A.V., and G.A. Isaac. (2006). Relative Humidity in Liquid, Mixed-Phase, and Ice Clouds. *J. Atmos. Sci.* 63. 2865–2880

Korolev, A.V., E.F. Emery, J.W. Strapp, S.G. Cober, G.A. Isaac, M. Wasey, and D. Marcotte. (2010). Small ice particles in tropospheric clouds: fact or artifact ? Airborne Icing Instrumentation Evaluation Experiment. *Bull. Amer. Meteor. Soc.* 92. 967–973.

Krämer, M., C. Schiller, A. Afchine, R. Bauer, I. Gensch, A. Mangold, S. Schlicht, N. Spelten, N. Sitnikov, S. Borrmann, M. de Reus, and P. Spichtinger. (2009). Ice supersaturations and cirrus cloud crystal numbers. *Atmos. Chem. Phys.* 9. 3505-3522.

Krotkov, N.A., S.A. Carn, A.J. Krueger, P.K. Bhartia, and K. Yang. (2006). Band residual difference algorithm for retrieval of SO2 from the Aura Ozone Monitoring Instrument (OMI). *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.* 44(5). 1259–1266.

Krotkov, N.A., B. McClure, R.R. Dickerson, S.A. Carn, C. Li, P.K. Bhartia, K. Yang, A.J. Krueger, Z. Li, P.F. Levelt, H. Chen, P. Wang and D. Lu. (2008). Validation of SO2 retrievals from the Ozone Monitoring Instrument over NE China. *J. Geophys. Res.*. 113. D16S40.

Lampert, A., A. Ehrlich, A. Dörnbrack, O. Jourdan, J.F. Gayet, G. Mioche, V. Shcherbakov, C. Ritter, and M. Wendisch. (2009). Microphysical and radiative characterization of a subvisible midlevel Arctic ice cloud by airborne observations – a case study. *Atmos. Chem. Phys.* 9. 2647-2661.

Lance, S., C.A. Brock, D. Rogers, and J.A. Gordon. (2010). Water droplet calibration of the Cloud Droplet Probe (CDP) and in-flight performance in liquid, ice and mixed-phase clouds during ARCPAC. *Atmos. Meas. Tech.* 3. 1683-1706.

Law, K.S., and A. Stohl. (2007). Arctic air pollution: Origins and impacts. *Sciences.* 315. 1537-1540.

Lawson, R.P., B.A. Baker, C.G. Schmitt, and T.L. Jensen. (2001). An overview of microphysical properties of Arctic clouds observed in May and July 1998 during FIRE ACE. *J. Geophys. Res.* 106. 14,989–15,014.

Lawson, R.P., D. O'Connor, P. Zmarzly, K. Weaver, B. Baker, Q. Mo, H. Jonsson. (2006a). The 2D-S (Stereo) Probe: Design and Preliminary Tests of a New Airborne, High-Speed, High-Resolution Particle Imaging Probe. *J. Atmos. Ocean. Technol.* 23. 1462–1477.

Lawson, R.P., B. Baker, B. Pilson, and Q. Mo. (2006b). In Situ Observations of the

Microphysical Properties of Wave, Cirrus, and Anvil Clouds. Part II: Cirrus Clouds. *J. Atmos. Sci.* 63. 3186–3203.

Lawson, R.P., B. Pilson, B. Baker, Q. Mo, E. Jensen, L. Pfister, and P. Bui. (2008). Aircraft measurements of microphysical properties of subvisible cirrus in the tropical tropopause layer. *Atmos. Chem. Phys.* 8. 1609-1620.

Lawson, R.P. (2011). Effects of ice particles shattering on the 2D-S probe. *Atmos. Meas. Technol.* 4(7). 1361-1381.

Lee, C., R.V. Martin, A. van Donkelaar, G. O'Byrne, N. Krotkov, A. Richter, L.G. Huey, and J. S. Holloway. (2009). Retrieval of vertical columns of sulfur dioxide from SCIAMACHY and OMI: Air mass factor algorithm development, validation, and error analysis. *J. Geophys. Res.* 114. D22303.

Legg, B. J. and, M.R., Raupach. (1982). Markov-chain simulation of particle dispersion in inhomogeneous flows: the mean drift velocity induced by a gradient in Eulerian velocity variance. *Bound. Layer Met.* 24. 3–13.

Levelt, P.F., and, R., Noordhoek. (2002). OMI Algorithm Theoretical Basis Document Volume I : OMI Instrument, Level 0-1b processor. Calibration & Operations.

Li, C., N.A. Krotkov, R. R. Dickerson, Z. Li, K. Yang, and M. Chin. (2010). Transport and evolution of a pollution plume from northern China: A satellite-based case study. *J. Geophys. Res.* 115. D00K03.

Lin X. and K.G. Hubbard. (2004). Uncertainties of Derived Dewpoint Temperature and Relative Humidity. *J. Appl. Meteor.* 43. 821-825.

Liu, Z., A.H. Omar, Y. Hu, M.A. Vaughan, and D.M. Winker. (2005). CALIOP Algorithm Theoretical Basis Document. Part 3: Scene Classification Algorithms.

Liu, Z., M. Vaughan, D. Winker, C. Kittaka, B. Getzewich, R. Kuehn, A. Omar, K. Powell, C. Trepte and C. Hostetlerd. (2009). The CALIPSO Lidar Cloud and Aerosol Discrimination: Version 2 Algorithm and Initial Assessment of Performance. *J. Atmos. Ocean. Technol.* 26. 1198–1213.

Lopez, Taryn, S. Carn, C. Werner, D. Fee, P. Kelly, M. Doukas, M. Pfeffer, P. Webley, C Cahill, D. Schneider. (2012). Evaluation of Redoubt Volcano's Sulfur Dioxide Emissions by the Ozone Monitoring Instrument. *J. of Volcanol. and Geotherm. Res.* ISSN 0377-0273.

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

Mace, G.G. (2007). Level 2 GEOPROF product process description and interface control document algorithm, version 5.3. *Cooperative Institute for Research in the Atmosphere, Fort Collins, Colorado*

Mazin, I.P., A.V. Korolev, A. Heymsfield, G.A. Isaac, and S.G. Cober. (2001). Thermodynamics of icing cylinder for measurements of liquid water content in supercooled clouds. *J. Atmos. Ocean. Technol.* 18. 543–558.

McFarquhar, G.M. and A. Heymsfield. (1998). The definition and significance of an effective radius for ice clouds. *J. Atmos. Sci.* 55. 2039-2052.

McFarquhar, G.M., J. Um, M. Freer, D. Baumgardner, G.L. Kok, and G. Mace. (2007). Importance of small ice crystals to cirrus properties: Observations from the Tropical Warm Pool International Cloud Experiment (TWP-ICE). *Geophys. Res. Lett.* 34. L13803.

McFarquhar, G.M., S. Ghan, J. Verlinde, A. Korolev, J.W. Strapp, B. Schmid, J. Tomlinson, S.D. Brooks, D.R. Collins, D. Cziczo, M.K. Dubey, I. Gultepe, G. Kok, A. Laskin, P. Lawson, P. Liu, D. Lubin, C. Mazzoleni, A.M. MacDonald, M. Wolde, A. Zelenyuk, R.A. Ferrare, C. Flynn, M. Shupe, D.D. Turner, M. Ovtchinnikov, S. Xie, and X. Liu. (2011). The Indirect and Semi-Direct Aerosol Campaign ISDAC. *Amer. Meteor. Soc. Bull.* 92. 183–201.

Milbrandt J.A., M.K. Yau. (2005). A multimoment bulk microphysics parameterization. Part I. Analysis of the role of the spectral shape parameter. *J. Atmos. Sci.* 62. 3051–3064.

Mishchenko, M.I. and Sassen, K. (1998). Depolarization of lidar returns by small ice crystals: An application to contrails. *Geophys. Res. Lett.* 25. 309–312.

Mitchell, D.L., R. Zhang, and R.L. Pitter. (1990). Mass-dimensional relationships for ice particles and the influence of riming on snowfall rates. *J. Appl. Meteor.* 29. 153–163.

Moran, K.P., B.E. Martner, M.J. Post, R.A. Kropfli, D.C. Welsh, and K.G. Widener. (1998). An unattended cloud-profiling radar for use in climate research. *Bull. Amer. Meteor. Soc.* 79. 443-455.

Morrison, H., K.D. Curry, M.D. Shupe, and P. Zuidema. (2005). A New Double-Moment Microphysics Parameterization for Application in Cloud and Climate Models. Part II: Single-Column Modeling of Arctic Clouds. *J. Atmos. Sci.* 62. 1678–1693.

Morrison, H., G. de Boer, G. Feingold, J. Harrington, M. D. Shupe and K. Sulia. (2012). Resilience of persistent Arctic mixed-phase clouds. *Nat. Geosci.* 5. 11-17.

Müller, D., I. Mattis, U. Wandinger, A. Ansmann, D. Althausen, and A. Stohl. (2005). Raman lidar observations of aged Siberian and Canadian forest fire smoke in the free troposphere over Germany in 2003: Microphysical particle characterization. *J. Geophys. Res.* 110. D17201.

Onasch, T.B., R.L. Siefert, S.D. Brooks, AJ. Prenni, B. Murray. M.A. Wilson and M.A. Tolbert. (1999). Infrared speclroscopie sludy of the deliquescence and efflorescence of ammonium sulfate aerosol as a function of temperature. *J. Geophys. Res.* 104(D17). 21317-21326.

Prenni AJ, P.J., Demott, D.C., Rogers, S.M., Kreidenweis, G.M. McFarquhar, G. Zhang, and M.R. Poellot. (2009). Ice nuclei characteristics from M-PACE and their relation to ice formation in clouds. *Nat. Geosci.* 2. 402–405.

Protat, A., G.M. McFarquhar, J. Um, and J. Delanoë. (2010). Obtaining best estimates for the microphysical and radiative properties of tropical ice clouds from TWP-ICE in situ microphysical observations. *J. Appl. Meteor. Climatol.* 50. 895-915.

Pruppacher H.R. and J.D. Klett. (1997). Microphysics of Clouds and Precipitation. *Atmos. Ocean. Sci. Lib.*

Quinn, P.K., G., Shaw, E., Andrews, E.G., Dutton, T., Ruoho-Airola, and S.L., Gong. (2007). Arctic haze: current trends and knowledge gaps. *Tellus B.* 59. 99-114.

Quinn, P.K., T.S., Bates, K, Schulz, G.E., Shaw. (2009). Decadal trends in aerosol chemical composition at Barrow, Alaska: 1976-2008. *Atmos. Chem. and Phys..* 9. 8883-8888.

Raatz, W.E. (1991). The climatology and meteorology of Arctic air pollution, in: Pollution of the Arctic Atmosphere. *edited by: Sturges, W.T. Elsevier. New York. USA.* 13–42.

Rogers, D.C., P.J. DeMott and S.M. Kreidenweis. (2001). Airborne measurements of tropospheric ice-nucleating aerosol particles in the Arctic spring. *J. Geophys. Res.* 106. 15053-15063.

Sassen, K., H. Zhao, and B.-K., Yu. (1989). Backscatter laser depolarization studies of simulated stratospheric aerosols: Crystallized sulfuric acid droplets. *Appl. Optics.* 28. 3024–3029.

Sassen, K., and B.S. Cho. (1992). Subvisual-thin cirrus lidar dataset for satellite verification and climatological research. *J. Appl. Meteor.* 31. 1275-1285.

Sassen, K., J.M. Comstock, Z. Wang, and G. Mace. (2001). Cloud and aerosol research capabilities at FARS: The Facility for Atmospheric Remote Sensing. *Bull. Amer. Meteor. Soc.* 82. 1119–1138.

Sassen, K., and J.M. Comstock. (2001). A Midlatitude Cirrus Cloud Climatology from the Facility for Atmospheric Remote Sensing. Part III: Radiative Properties. *J. Atmos. Sci.* 58. 2113–2127.

Serreze, M.C., and J.A. Francis. (2006). The Arctic on the fast track of change. *Weather.* 61. 65–69.

Seinfeld, J.H., and S.N. Pandis. (1998), Atmospheric Chemistry and Physics: From

Pollution to Climate Change. *John Wiley & Sons Inc.*. New York.

Shaw, G.E. (1995). The arctic haze phenomenon. *Bull. Am. Meteorol. Soc.* 76. 2403–2413.

Shimizu, A., N. Sugimoto, I. Matsui, K. Arao, I. Uno, T. Murayama, N. Kagawa, K. Aoki, A. Uchiyama, and A. Yamazaki. (2004). Continuous observations of Asian dust and other aerosols by polarization lidars in China and Japan during ACE-Asia. *J. Geophys. Res.* 109. D19S17.

Shindell, D.T., Chin, M., Dentener, F., Doherty, R.M., Faluvegi, G., Fiore, A.M., Hess, P., Koch, D.M., MacKenzie, I.A., Sanderson, M.G., Schultz, M.G., Schulz, M., Stevenson, D.S., Teich, H., Textor, C., Wild, O., Bergmann, D.J., Bey, I., Bian, H., Cuvelier, C., Duncan, B.N., Folberth, G., Horowitz, L.W., Jonson, J., Kaminski, J.W., Marmer, E., Park, R., Pringle, K.J., Schroeder, S., Szopa, S., Takemura, T., Zeng, G., Keating, T.J., Zuber, A. (2008). A multi-model assessment of pollution transport to the Arctic. *Atm. Chem. and Phys.* 8. 5353-5372.

Shinn E.A., D.W. Griffin and D.B. Seba. (2003). Atmospheric transport of mold spores in clouds of desert dust. *Arch. Environ. Health* 58(8). 498-504.

Shupe, M.D., J.M. Intrieri. (2004). Cloud Radiative Forcing of the Arctic Surface: The Influence of Cloud Properties, Surface Albedo, and Solar Zenith Angle. *J. Climate.* 17. 616–628.

Shupe, M.D., P. Kollias, P.O.G. Persson, and G.M. McFarquhar. (2008). Vertical motions in Arctic mixed-phase stratus. *J. Atmos. Sci.* 65. 1304-1322.

Shupe, M.D., V.P. Walden, E. Eloranta, T. Uttal, J.R. Campbell, S.M. Starkweather, and M. Shiobara. (2011a) Clouds at Arctic Atmospheric Observatories, Part I: Occurrence and macrophysical properties, *J. Appl. Meteor. Climatol.* 50 626–644.

Shupe, M.D. (2011b). Clouds at Arctic Atmospheric Observatories, Part II: Thermodynamic phase characteristics. *J. Appl. Meteor. Climatol.* 50. 645–661.

Sirois, A. and L.A. Barrie. (1999). Arctic lower tropospheric aerosol trends and composition at Alert, Canada: 1980-1995. *J. Geophys. Res.* 104. 11599-11618.

Smith, S.J., J., van Aardenne, Z., Klimont, R., Andres, A., Volke, and S., Delgado Arias. (2011). Anthropogenic sulfur dioxide emissions: 1850–2005. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* 10. 16111-16151.

Spinei, E., S.A. Carn, N.A. Krotkov, G.H. Mount, K. Yang, and A. Krueger. (2010). Validation of ozone monitoring instrument SO2 measurements in the Okmok volcanic cloud over Pullman, WA, July 2008, *J. Geophys. Res.* 115. D00L08.

Stephens, G.L., S. Tsay, P.W. Stackhouse Jr and P.J. Flatau. (1990). The relevance of the microphysical and radiative properties of cirrus clouds to climate and climatic feedback. *J. Atmosph. Sci.* 47(14). 1742-1753.

Stephens, G.L. (1994). Remote sensing of the lower atmosphere. *Oxford University Press, Oxford.*

Stohl, A., M. Hittenberger and G. Wotawa. (1998). Validation of the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART against large scale tracer experiment data. *Atmos. Environ.* 32. 4245–4264.

Stohl, A., C., Forster, A., Frank, P., Seibert, and, G., Wotawa. (2005). Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2. *Atmos. Chem. Phys.* 5. 2461-2474.

Stohl, A. (2006). Characteristics of atmospheric transport into the Arctic troposphere. *J. of Geophys. Res.* 111. D11306.

Stone, R.S., G.P. Anderson, E. Andrews, E.G. Dutton, E.P. Shettle, and A. Berk. (2007). Incursions and radiative impact of Asian dust in northern Alaska. *Geophys. Res. Lett.* 34. L14815.

Sugimoto, N., I. Uno, M. Nishikawa, A. Shimizu, I. Matsui, X. Dong, Y. Chen, and H. Quan. (2003). Record heavy Asian dust in Beijing in 2002: Observations and model analysis of recent events. *Geophys. Res. Lett.* 30(12). 1640.

Sullivan, R.C., M.D. Petters, P.J. DeMott, S.M. Kreidenweis, H. Wex, D. Niedermeier, S. Hartmann , T. Clauss, F. Stratmann, P. Reitz, J. Schneider, and B. Sierau.

(2010). Irreversible loss of ice nucleation active sites in mineral dust particles caused by sulphuric acid condensation. *Atmos. Chem. Phys.* 10. 11471–11487.

Tesche, M., A. Ansmann, D. Müller, D. Althausen, R. Engelmann, V. Freudenthaler and S. Grob. (2009). Vertically resolved separation of dust and smoke over Cape Verde using multiwavelength Raman and polarization lidars during Saharan Mineral Dust Experiment 2008. *J. Geophys. Res.* 114. D13202.

Testud, J., S. Oury, R.A. Black, P. Amayenc, X. Dou. (2001). The Concept of "Normalized" Distribution to Describe Raindrop Spectra: A Tool for Cloud Physics and Cloud Remote Sensing. *J. Appl. Meteor.* 40. 1118–1140.

Thomson, D.J. (1987). Criteria for the selection of stochastic models of particle trajectories in turbulent flows. *J. Fluid Mech.* 180. 529-556.

Tu, F.H., D.C. Thornton, A.R. Bandy, G.R. Carmichael, Y. Tang, K.L. Thornhill, G.W. Sachse, and D.R. Blake. (2004). Long-range transport of sulfur dioxide in the central Pacific. *J. Geophys. Res.* 109. D15S08.

Twomey, S. (1977). The influence of pollution on the shortwave albedo of clouds. *J. Atmos. Sci.* 34. 11491152.

Uno I., K. Eguchi, K. Yumimoto, T. Takemura, A. Shimizu, M. Uematsu, Z. Liu, Z. Wang, Y. Hara and N. Sugimoto. (2009). Asian dust transported one full circuit around the globe. *Nat. Geosci.*2. 557-560.

Usher, C. R., A. E. Michel, and V. H. Grassian. (2003). Reactions on mineral dust, Chem. Rev., 103(12), 4883-4939.

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

Van de Hulst, H.C. (1957). Light scattering: by small particles. *Courier Dover Publications.* Dover, Mineola, N.Y.

Van Diedenhoven, B., A.M. Fridlind, and A.S. Ackerman. (2011). Influence of humidified aerosol on lidar depolarization measurements below ice-precipitating Arctic stratus. *J. Appl. Meteor. Climatol.* 50. 2184-2192.

Vaughan, M., S. Young, D. Winker, K. Powell, A. Omar, Z. Liu, Y. Hu, and C. Hostetler. (2004). Fully automated analysis of space-based lidar data: an overview of the CALIPSO retrieval algorithms and data products, Laser Radar Techinques for Atmospheric Sensing, Proceedings of SPIE.

Vogelezang, D.H., and A.A. Holtslag. (1996). Evaluation and model impacts of alternative boundary-layer height formulations. *Boundary-Layer Meteorology.* 81(3). 245-269.

Warneke C., R. Bahreini, J. Brioude, C.A. Brock, J.A. De Gouw, D.W. Fahey, K.D. Froyd, J.S. Holloway, A. Middlebrook, L. Miller, S. Montzka, D.M. Murphy, J. Peischl, T.B. Ryerson, J.P. Schwarz, J.R. Spackman, and P. Veres. (2009). Biomass burning in Siberia and Kazakhstan as the main source for Arctic Haze over the Alaskan Arctic in April 2008. *Geophys. Res. Let.* 36. L02813.

Warneke, C., K.D. Froyd, J. Brioude, R. Bahreini, C.A. Brock, A. Cozic, J.A. de Gouw, D.W. Fahey, R.A. Ferrare, J.S. Holloway, A.M. Middlebrook, L. Miller, S. Montzka, J.P. Schwarz, H. Sodemann, J.R. Spackman and A. Stohl. (2010). An important contribution to springtime Arctic aerosol from biomass burning in Russia. *Geophys. Res. Let.* 37. L01801.

Welti, A., F., Lüönd, O., Stetzer, and U. Lohmann. (2009). Influence of particle size on the ice nucleating ability of mineral dusts. *Atmos. Chem. Phys.* 9. 6705–6715.

Wyser and Jones. (2005). Modeled and observed clouds during surface heat budget of the Arctic Ocean (SHEBA). *J. Geophys. Res.*110. D09207.

Yalcin, K., C.P. Wake, and M. Germani. (2002). A 100-year record of North Pacific volcanism in an ice core from Eclipse Icefield, Yukon Territory, Canada. *J. Geophys.*

Res.. 108(D1). 4012.

Yang, K., N.A. Krotkov, A.J. Krueger, S.A. Carn, P.K. Bhartia, and P.F. Levelt. (2007). Retrieval of large volcanic SO2 columns from the Aura Ozone Monitoring Instrument: Comparison and limitations. *J. Geophys. Res.* 112. D24S43.

Young K.C. (1974). The role of contact ice nucleation in ice phase initiation in clouds. *J. of Atmos. Sci.* 3. 1735–1748.

Young, S.A., D.M., Winker, M.A., Vaughan, Y., Hu, and R.E., Kuehn. (2008). CALIOP Algorithm Theoreical Basis Document. Part 4: Extinction Retrieval Algorithms.

Zelenyuk A., D. Imre, M. Earle, R. Easter, A. Korolev, R. Leaitch, P. Liu, A.M. Macdonald, M. Ovchinnikov, and W. Strapp. (2010). In Situ Characterization of Cloud Condensation Nuclei, Interstitial, and Background Particles Using the Single Particle Mass Spectrometer, SPLAT II. *Anal. Chem.* 82. 7943–7951.

Zhang, D., Y. Iwasaka, G. Shi, J. Zang, A. Matsuki, and D. Trochkine. (2003). Mixture state and size of Asian dust particles collected at southwestern Japan in spring 2000. *J. Geophys. Res.* 108. 4760.

Zhang, M., I. Uno, Y. Yoshida, Y. Xu, Z.Wang, H. Akimoto, T. Bates, T. Quinn, A. Bandy, and B. Blomquist. (2004). Transport and transformation of sulfur compounds over East Asia during the TRACE-P and ACE-Asia campaigns. *Atmos. Environ.* 38. 6947-6959.