



HAL
open science

Apport de la mesure lidar dans l'étude des aérosols et nuages stratosphériques polaires et de leurs perturbations climatiques

Florent Tencé

► **To cite this version:**

Florent Tencé. Apport de la mesure lidar dans l'étude des aérosols et nuages stratosphériques polaires et de leurs perturbations climatiques. Océan, Atmosphère. Université Paris-Saclay, 2023. Français. NNT : 2023UPASJ004 . tel-04071938

HAL Id: tel-04071938

<https://theses.hal.science/tel-04071938>

Submitted on 17 Apr 2023

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.

Apport de la mesure lidar dans l'étude des aérosols et nuages stratosphériques polaires et de leurs perturbations climatiques.

*Interest of lidar measurements for the study of aerosols and
polar stratospheric clouds and their climatic disturbances.*

Thèse de doctorat de l'université Paris-Saclay

École doctorale n° 129 des Sciences de l'Environnement d'Île de France
(ED SEIF)

Spécialité de doctorat : Instrumentation, télédétection, observation et
techniques spatiales pour l'océan, l'atmosphère et le climat

Graduate School : Géosciences, climat, environnement et planètes

Référent : Université de Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines

Thèse préparée dans l'unité de recherche **LATMOS (Université Paris-Saclay,
UVSQ, CNRS)**, sous la direction de **Alain SARKISSIAN**, physicien adjoint HDR
et la co-direction de **Julien JUMELET**, physicien adjoint.

Thèse soutenue à Paris, le 30 janvier 2023, par

Florent TENCÉ

Composition du jury

Membres du jury avec voix délibérative

Solène TURQUETY Professeure, Sorbonne Université (LATMOS)	Présidente
Valéry CATOIRE Professeur, CNRS - Université d'Orléans (LP2CE)	Rapporteur & Examineur
Emmanuel RIVIÈRE Maître de conférences, Université de Reims (GSMA/URCA)	Rapporteur & Examineur
Slimane BEKKI Directeur de recherche, CNRS (LATMOS)	Examineur
Nathalie HURET Professeure des Universités, Université Clermont Auvergne (LaMP)	Examinatrice
Nadège MONToux Maître de conférences, Université Clermont Au- vergne (LaMP)	Examinatrice

Titre : Apport de la mesure lidar dans l'étude des aérosols et nuages stratosphériques polaires et de leurs perturbations climatiques.

Mots clés : aérosols, stratosphère, lidar, volcanisme, feux de biomasse

Résumé :

À mesure que la compréhension des interactions entre la chimie de l'ozone stratosphérique et le changement climatique progresse, les conséquences de l'évolution des températures autant que celui des perturbations de la charge stratosphérique en aérosols deviennent un sujet d'intérêt scientifique de premier plan.

Il est bien établi que le volcanisme est la principale source d'aérosols stratosphériques et que les épisodes de volcanisme majeurs s'associent à des anomalies négatives d'ozone. Toutefois, l'effet à haute latitude d'une surcharge en aérosols soufrés, précurseurs des nuages stratosphériques polaires (PSC), reste mal connu.

De plus, des injections stratosphériques d'aérosols carbonés sont observées lors d'importants feux sur les dernières années. Au Canada en 2017 et en Australie en 2020, des masses d'aérosols comparables à celles émises par le volcanisme modéré ont été rapportées. Cela continue de nourrir un fort intérêt scientifique, le carbone n'étant pas naturellement présent en stratosphère et les effets de son apport significatif sont encore à étudier. Aussi, il est attendu que le changement climatique favorise l'occurrence de feux majeurs, rajoutant la question des tendances à long terme de la charge en aérosols à la nécessité de caractériser finement l'effet d'une telle perturbation.

Précurseurs de la destruction saisonnière d'ozone, les PSC, formés sur les aérosols, sont au cœur de ces enjeux. Le lidar est un instrument adapté à l'étude de ces phases condensées. À l'aide du lidar de la station française antarctique Dumont d'Urville (DDU) et des instruments spatiaux pertinents, cette thèse étudie les tendances et processus liés aux PSC et aux perturbations en aérosols stratosphériques.

Les mesures acquises à DDU utilisent différentes classifications de PSC pour illustrer des processus fins uniquement accessibles par la géométrie d'un instrument sol. La paramétrisation des

PSC repose sur une classification concise et représentative, et la position côtière de la station est un atout de par la grande variabilité des observations de particules qu'elle permet. Une tendance du nombre de jours de PSC par an à DDU de 2007 à 2020 est établie par la combinaison de mesures lidar et de températures. Cette tendance, de -4,4 jours de PSC par an par décennie, est le reflet d'une tendance opposée des températures stratosphériques sur cette période. Cette dernière, récemment confirmée par d'autres études, questionne l'évolution long terme dans le contexte du changement climatique.

Les feux australiens en 2020 ont injecté une masse inédite d'aérosols en stratosphère, dont une partie a été transportée jusqu'aux hautes latitudes australes. Le lidar de DDU a pu sonder ces aérosols de janvier à octobre 2020. Cela a permis une caractérisation riche des panaches au fil du temps. Leur présence au sein du vortex a été confirmée et pose la question délicate des interactions entre aérosols carbonés et PSC. La forte destruction d'ozone rapportée à DDU en octobre 2020 ne peut être comparée qu'à l'année 2015, marquée par une surcharge en aérosols due à l'éruption du Calbuco. Nous soulignons également l'enjeu technologique autour de la spéciation des aérosols sur les signatures fines.

Pour s'adapter aux questions scientifiques récentes, une campagne de terrain a permis l'évolution du lidar en place à DDU vers une source laser multispectrale infrarouge / visible / ultraviolet. Cette configuration offre de nouvelles possibilités, dont un accès à la granulométrie qui peut directement résoudre la spéciation des aérosols et nuages. L'éruption historique survenue au Tonga en janvier 2022 a injecté une grande quantité d'aérosols, en partie détectés à DDU de février à septembre 2022. Cette thèse inclut donc des travaux sur cet événement utilisant l'instrumentation de campagne en tant que perspective technique et surtout scientifique pour l'étude des aérosols et nuages à haute latitude.

Title : Interest of lidar measurements for the study of aerosols and polar stratospheric clouds and their climatic disturbances.

Keywords : aerosols, stratosphere, lidar, volcanism, wildfires

Abstract :

As the understanding of the interactions between stratospheric ozone chemistry and climate change progresses, the consequences of both temperature change and perturbations in stratospheric aerosol loading are becoming a topic of major scientific interest.

It is well established that volcanism is the main source of stratospheric aerosols and that major volcanic episodes are associated with negative ozone anomalies. However, the high latitude effect of an overload of sulphate aerosols, precursors of polar stratospheric clouds (PSC), remains poorly understood. In addition, stratospheric injections of carbonaceous aerosols have been observed during major fires in recent years. In Canada in 2017 and Australia in 2020, aerosol masses comparable to those emitted by moderate volcanism were reported. This is of great scientific interest, as carbon does not naturally occur in the stratosphere and the effects of its significant intake are yet to be studied. Also, climate change is expected to favour the occurrence of major fires, adding the question of long-term trends in aerosol loading to the need to finely characterise the effect of such a disturbance.

PSCs, formed on aerosols, are the precursors of seasonal ozone destruction and are at the heart of these issues. Lidar is a suitable instrument for studying these condensed phases. Using the lidar at the French Antarctic station Dumont d'Urville (DDU) and relevant space instruments, this thesis investigates trends and processes related to PSCs and stratospheric aerosol perturbations.

Measurements acquired at DDU use different classifications of PSCs to illustrate fine processes that are only accessible through the geometry of a ground-based instrument. The parameterisation of the PSCs is based on a concise and representative

classification, and the coastal location of the station is an advantage due to the high variability of the particle observations it allows. A trend in the number of PSC days per year at DDU from 2007 to 2020 is established by combining lidar and temperature measurements. This trend, of -4.4 PSC days per year per decade, reflects an opposite trend in stratospheric temperatures over this period. The latter, recently confirmed by other studies, raises questions about long-term trends in the context of climate change.

The Australian fires in 2020 injected an unprecedented mass of aerosols into the stratosphere, some of which was transported to the high southern latitudes. The DDU lidar was able to probe these aerosols from January to October 2020. This allowed a rich characterisation of the plumes over time. Their presence within the vortex was confirmed and raises the delicate question of the interactions between carbonaceous aerosols and PSC. The high ozone depletion reported at DDU in October 2020 can only be compared to the year 2015, marked by an aerosol overload due to the Calbuco eruption. We also highlight the technological challenge around aerosol speciation on fine signatures.

In order to adapt to recent scientific questions, a field campaign allowed the evolution of the lidar installed at DDU towards a multispectral infrared / visible / ultraviolet laser source. This configuration offers new possibilities, including access to granulometry that can directly resolve aerosol and cloud speciation. The historical eruption in Tonga in January 2022 injected a large amount of aerosols, partly detected at DDU from February to September 2022. This thesis therefore includes work on this event using field instrumentation as a technical and especially scientific perspective for the study of aerosols and clouds at high latitudes.

Remerciements

Je tiens à remercier l'ensemble des personnes qui m'ont permis de réaliser cette thèse. Tout d'abord, bien sûr, je remercie Julien Jumelet et Alain Sarkissian qui m'ont encadré durant un peu plus de trois ans. Leur accompagnement, leurs conseils et le cadre de travail qu'ils m'ont offert ont été précieux. Merci également à Slimane Bekki qui m'a accompagné avec régularité tout au long de mon doctorat. Je remercie également tous les autres chercheurs, doctorants et ingénieurs du LATMOS qui, via de simples discussions ou des collaborations plus formelles ont contribué à améliorer ce travail de thèse. Je remercie notamment Sergey Khaykin, qui m'a permis de participer à plusieurs études stimulantes.

Je remercie les membres du jury Solène Turquety, Slimane Bekki, Nathalie Huret et Nadège Montoux pour leur participation à ma soutenance et à l'évaluation de ma thèse, et particulièrement Valéry Catoire et Emmanuel Rivière qui, en tant que rapporteurs, ont consacré un temps précieux à la correction de mon manuscrit. Je remercie également Philippe Goloub et François Ravetta qui formaient mon comité de suivi de thèse et qui ont pu m'apporter de précieux conseils ainsi qu'un regard extérieur sur mon travail.

Enfin je remercie chaleureusement mes collègues, mes proches et toutes les personnes qui, en dehors du contexte professionnel, sont mon quotidien et m'ont permis - indirectement - de mener à bien ce travail.

Table des matières

1	Aérosols et Nuages en Stratosphère, contexte général	4
1.1	Dynamique de la stratosphère	4
1.1.1	Les couches de l'atmosphère	4
1.1.2	La circulation de Brewer-Dobson	5
1.1.3	Le vortex polaire	6
1.1.4	La tropopause tropicale	8
1.2	La composition de la stratosphère et ses processus physico-chimiques clés	8
1.2.1	La chimie de l'ozone	9
1.2.2	Les phases gazeuses en stratosphère	15
1.2.3	Les aérosols stratosphériques	18
1.2.4	Les nuages stratosphériques polaires	23
1.3	Les perturbations de la stratosphère	32
1.3.1	Le volcanisme	33
1.3.2	Les feux de biomasse	35
1.4	Enjeux et problématique de la thèse	37
1.4.1	Enjeux globaux	38
1.4.2	Cadre de la thèse	40
2	Instruments, données et restitution des variables d'études	45
2.1	Le lidar stratosphérique : acquisition et traitement des mesures	45
2.1.1	La technologie lidar	45
2.1.2	Lidar sol de Dumont d'Urville	47
2.1.3	Variables pertinentes	49
2.1.4	Procédures d'inversion des mesures lidar	52
2.1.5	Estimation des incertitudes	63
2.2	Présentation des instruments spatiaux	65

2.2.1 CALIOP	65
2.2.2 Ozone Mapping and Profiler Suite - Limb Profiler (OMPS-LP)	66
2.2.3 Ozone Monitoring Instrument - OMI	66
2.2.4 Microwave Limb Sounder - MLS	67
2.2.5 IASI	67
2.3 Calcul de masse à partir de mesures satellites	68
2.3.1 Calcul de masse d'une espèce gazeuse à partir des mesures de concentration de MLS	68
2.3.2 Calcul de masse d'aérosols à partir des mesures d'extinction de OMPS	70
2.4 La température pour le traitement lidar et l'étude des PSC	71
2.4.1 Sensibilité du traitement lidar à la température	71
2.4.2 Radiosondes à DDU	72
2.4.3 Produits de réanalyse	75
2.4.4 Comparaison des températures : NCEP, ERA5, IASI et radiosondes	75
2.5 Conclusion	81
3 Étude des nuages stratosphériques polaires à DDU de 2007 à 2020	83
3.1 Introduction	84
3.2 Traitement des mesures et classifications	86
3.2.1 Détection de PSC par mesures lidar	86
3.2.2 Détection de PSC par CALIOP	87
3.2.3 Schémas de classification	88
3.3 Résultats	91
3.3.1 Classifications à deux variables	91
3.3.2 Cas d'étude : mesure de PSC du 28/08/2015	96
3.3.3 Jeux de données de température	99
3.3.4 Établissement d'une tendance d'occurrences de PSC à DDU	100
3.4 Conclusion	104
4 Étude des aérosols injectés par le Black Summer 2019-2020	109
4.1 Introduction	110
4.2 Déroulé du Black Summer	112
4.3 Instruments et données exploités	113
4.4 Observations et résultats	114
4.5 Conclusion	127

5 Jouvence du lidar de DDU et restitution en taille de populations d'aérosols volcaniques	131
5.1 Étude de processus : détections de panaches d'aérosols à DDU en novembre 2021	131
5.2 Campagne d'été et jouvence du lidar à Dumont d'Urville	136
5.3 Éruption du volcan Hunga Tonga-Hunga Ha'apai	139
5.3.1 Calculs des masses injectées en stratosphère	140
5.3.2 Détections des panaches d'aérosols à DDU	142
5.4 Restitution de distributions en taille de population d'aérosols à partir de mesures lidar multispectrales	144
5.4.1 Méthode	145
5.4.2 Résultats	148

Table des figures

1.1 Couches de l'atmosphère	5
1.2 Illustration schématique de la circulation de Brewer-Dobson.	7
1.3 Concentration et rapport de mélange des principaux constituants atmosphériques.	9
1.4 Concentration d'ozone mesurée et cycle de Chapman.	11
1.5 Représentation schématique de la concentration des principales espèces chlorées au fil de l'hiver polaire.	14
1.6 Moyenne mensuelle de colonne totale d'ozone au dessus du pôle sud en octobre, avant et après l'émission massive de CFC et de substances destructrices d'ozone.	15
1.7 Distributions d'aérosols issues de l'interpolation de distributions lognormales bimodales sur les mesures in-situ des compteurs optiques de particules réalisées à Laramie, Wyoming entre 1991 et 2003.	22
1.8 Illustration schématique des processus qui gouvernent le cycle de vie et la distribution des aérosols stratosphériques.	23
1.9 Volume des gouttelettes de STS en fonction de la température et concentrations, en pourcentage massique, des constituants des gouttelettes de STS en fonction de la température.	27
1.10 Températures d'existence T_{NAT} , T_{STS} et T_{ICE} en fonction de l'altitude et des concentrations en H_2O , en ppm, et HNO_3 en ppb.	28
1.11 Description schématique des chemins de formation des particules de PSC tels que compris actuellement.	30
1.12 Évolution temporelle du volume de PSC de 2006 à 2018 en Antarctique et en Arctique.	31
1.13 Moyennes mensuelles des occurrences de PSC en Antarctique vues par CALIOP, moyennées sur la période 2006 - 2018.	31
1.14 Moyennes mensuelles des occurrences de PSC en Arctique vues par CALIOP, moyennées sur la période 2006 - 2018.	32
1.15 Masses d'aérosols en stratosphère pour les hémisphères nord et sud de 2012 à 2020.	34

1.16 Séries temporelles de la quantité d'espèces chlorées en stratosphère, de la radiation solaire atteignant la Terre, de l'épaisseur optique des aérosols stratosphériques et du changement des niveaux globaux d'ozone par rapport à la période 1964 - 1980.	35
1.17 Conditions météorologiques favorisant la formation de pyroCb.	37
1.18 Séries temporelles des moyennes annuelles de colonne totale d'ozone mesurées et simulées.	39
2.1 Illustration du principe de la mesure lidar.	46
2.2 Photographie de l'abri contenant le lidar à DDU.	48
2.3 Carte de l'Antarctique et des stations scientifiques qui l'occupent.	49
2.4 Nombre de jours par an pour lesquels DDU est située à l'intérieur du vortex polaire.	50
2.5 Vitesse du vent mesurée par radiosondes à DDU de 2010 à 2019.	50
2.6 Illustration de l'importance du choix du temps d'intégration par rapport à l'homogénéité des scènes atmosphériques sondées.	57
2.7 Illustration de l'importance du choix du temps d'intégration sur la mesure lidar du 29 juillet 2019 à DDU.	59
2.8 Profils de R_{532} mesurés à DDU le 17/05/2022, inversés avec et sans traitement du bruit de fond de ciel.	60
2.9 Altitudes et distances d'explosion des radiosondes par rapport à DDU, en hiver et en été.	73
2.10 Répartition spatiale des radiosondes lancées à DDU de 2010 à 2020 de juin à septembre, entre 15 et 25 km.	74
2.11 Champs de température de réanalyse de ERA5 à 100 hPa sur le domaine spatial correspondant à la dérive horizontale des radiosondes présentée en figure 2.10.	74
2.12 Profils de températures pour le 07 juillet 2020, fournis par NCEP, ERA5, IASI et la radiosonde de DDU, en fonction de la pression et de l'altitude. Dérivées verticales de ces profils de température en fonction de l'altitude.	77
2.13 Profils de températures pour le 10 janvier 2020, fournis par NCEP, ERA5, IASI et la radiosonde de DDU, en fonction de la pression et de l'altitude. Dérivées verticales de ces profils de température en fonction de l'altitude.	78
2.14 Différence entre les températures de NCEP et des radiosondes de DDU, de 2007 à 2020.	79
2.15 Différence entre les températures de ERA5 et des radiosondes de DDU, de 2007 à 2020.	79
2.16 Différence entre les températures de IASI et des radiosondes de DDU, de 2007 à 2020.	80
3.1 Cadre des trois classifications considérées dans cette étude : B05, P11 et P18.	90
3.2 Distribution des types de PSC mesurés à DDU pour les trois classifications étudiées : B05, P18, P11 et mesurés par CALIOP au dessus de DDU et triés par P18.	93
3.3 Distributions des mesures de PSC acquises à DDU de 2007 à 2020 selon les trois schémas de classification : B05, P11 et P18.	95

3.4 Distributions des détections de PSC à DDU de 2007 à 2020 en fonction de l'altitude et de la température par rapport au seuil pertinent (T_{NAT} , T_{STS} ou T_{ICE}).	97
3.5 Rapport de rétrodiffusion à 532 nm des mesures lidar acquises à DDU le 28/08/2015, types de PSC identifiés par P18 et températures de ERA5 à DDU par rapport à T_{ICE} .	98
3.6 Cartes de surface de PSC issues du modèle Reprobus pour le 28/08/2015 à 435 K, 475 K et 550 K.	98
3.7 Comparaison des profils de température à DDU le 2015/08/28, champs de température d'ERA5 autour de DDU et trajectoire de la radiosonde lancée à DDU.	100
3.8 Tendence du nombre de jours de PSC par an à DDU, de 2007 à 2020 basée sur les mesures lidar de DDU et les données de température.	101
3.9 Tendence de température à DDU, à partir des mesures IASI, de 2008 à 2020.	103
3.10 Distribution de l'épaisseur du domaine stratosphérique satisfaisant $T < T_{NAT}$ inoccupé par des couches nuageuses, en km, pour les jours où un PSC est détecté à DDU.	104
4.1 Carte de l'Australie, de la zone de feux intenses et de la station française antarctique Dumont d'Urville.	112
4.2 Indice Aérosol UV mesuré par OMI moyenné au sud de 30°S et dans le domaine délimité par 61.5°S-71.5°S; 130°E-150°E autour de la station DDU, de 2010 à 2019 et en 2019-2020.	114
4.3 Séries temporelles du 13/10/2019 au 29/02/2020 du coefficient d'extinction à 675 nm de OMPS moyenné autour de DDU et de R_{532} mesuré par le lidar de DDU. Vue rapprochée de la série temporelle de R_{532} du 04/11/2019 au 08/11/2019.	116
4.4 Évolution temporelle des masses totales quotidiennes de CO, CH ₃ CN, H ₂ O et d'aérosols au-delà du niveau de température potentielle 380 K, entre 20°S et 82°S.	117
4.5 Mesures de MLS de concentrations de H ₂ O et CO à 100 hPa et 146 hPa au-dessus de l'Antarctique et de DDU.	118
4.6 Carte de l'indice aérosol UV mesuré par OMI moyenné les 6 et 7 janvier et les 13 et 14 janvier 2020 et trajectoire inverse générée par Hysplit d'une durée de 315 heures aboutissant à DDU le 19 janvier 2020 à 16 :00 UTC à 13.5 km.	119
4.7 Profils de R_{532} mesurés à DDU les 19/01/2020, 01/02/2020, 20/02/2020, 20/07/2020 et 03/09/2020 et série temporelle de R_{532} du 12/01/2020 au 16/11/2020 à DDU.	120
4.8 Cartes d'indice aérosol UV de OMI et trajectoires inverses générées par Hysplit, d'une durée de 315 heures arrivant à DDU les 28/01/2020, 20/02/2020, 15/03/2020, 22/03/2020, 23/03/2020, 06/04/2020, 09/04/2020 et 18/04/2020.	122
4.9 Séries temporelles de R_{532} mesurées à DDU les 06/02/2020, 23/03/2020, 26/07/2020 et 05/08/2020 et profils de dépolarisation et de température correspondants.	124
4.10 Pression partielle d'ozone mesurée par radiosondes lancées à DDU à mi-octobre, de 2006 à 2020.	125

4.11 R_{532} des couches d'aérosols identifiées de janvier à juin 2020 en fonction du jour de l'année et de la dépolarisation, et R_{532} de ces mêmes couches d'aérosols en fonction de l'altitude.	126
5.1 Série temporelle de R_{532} mesurée par le lidar de DDU du 4 au 8 novembre 2019.	132
5.2 Distribution globale des valeurs zonales d'épaisseur optique des aérosols stratosphériques en fonc- tion du temps et de la latitude : pour les mesures de OMPS, pour la colonne stratosphérique intégrée des simulations de WACCM correspondant aux éruptions du Ulawun et du Raikoke et aux seules éruptions du Ulawun.	133
5.3 Profils des températures mesurées par les radiosondes lancées à DDU les 04/11/2019, 05/11/2019, 06/11/2019 et 08/11/2019.	134
5.4 Cartes des mesures d'index aérosol UV fournies par OMI, moyennées sur deux jours, pour les 20/08/2019, 10/09/2019, 22/09/2019 et 07/11/2019.	135
5.5 Photographies du lidar de DDU prises en 2022 lors de la campagne de jouvence.	137
5.6 Perturbation de la masse de vapeur d'eau entre 100 hPa et 1 hPa entre -90°S et 90°N à la suite de l'éruption du Hunga Tonga.	141
5.7 Perturbation de la masse d'aérosols entre 380 K et 40.5 km, en pourcentage par rapport au niveau pré-éruption pris entre le 1er et le 12 janvier 2022.	142
5.8 Série temporelle de R_{532} mesuré par le lidar de DDU du 12 février au 30 août 2022.	143
5.9 Profils de R_{355} , R_{532} et R_{1064} mesurés à DDU les 7 mars, 17 mai, 2 juin, 16 juin et 11 juillet 2022.	148
5.10 Densités de particules en fonction du logarithme du rayon, issues des estimations de distributions en taille basées sur les mesures lidar des panaches d'aérosols du Hunga Tonga acquises à DDU en 2022.	149
5.11 Valeurs typiques du rayon moyen des principales particules stratosphériques et rayons estimés des aérosols volcaniques du Hunga Tonga en 2022 à partir des mesures lidar de DDU.	150
5.12 Rayons effectifs estimés à partir des moyennes mensuelles des mesures d'extinction de SAGE III/ISS, de janvier à mai 2022, entre 30°S et 10°N.	151
5.13 Rayons effectifs calculés à partir des mesures lidar conduites à DDU en 2022, en fonction du temps.	151
5.14 Série temporelle du R_{532} calculé à partir des mesures lidar conduites à DDU du 02 juin au 16 sep- tembre 2022 et des températures mesurées par les radiosondes lancées à DDU sur la même période.	152
5.15 Cartes de vorticité potentielle et surface de PSC issues des modèles Mimosa et Reprobis pour le 11/07/2022 à 475 K.	153

Liste des tableaux

1.1 Bilan global de N_2O , adapté de Jacob [1999]	16
2.1 Erreur quadratique moyenne, biais et écart-type entre les températures fournies par NCEP, ERA5 et IASI et les mesures par radiosondes réalisées à DDU, pour toute l'année et l'hiver seul, entre 15 et 25 km.	80
4.1 Propriétés optiques des aérosols stratosphériques issus de feux de biomasse reportées dans la littérature.	127
5.1 Caractéristiques des distributions en tailles estimées à partir des mesures lidar des panaches d'aérosols de l'éruption du Hunga Tonga.	149

Introduction

Il est difficile de dater les premières études portant sur les conditions météorologiques locales, aussi empiriques soient elles, tant elles sont au cœur de la vie et des activités humaines. De même, d'anciennes civilisations possédaient déjà de larges connaissances en astronomie. Les études portant sur ce qui se situe entre ces deux extrêmes, à savoir l'atmosphère moyenne, sont quant à elles beaucoup plus récentes. À de rares exceptions près, les phénomènes qui y prennent place ne sont pas visibles pour l'observateur terrestre et les capacités techniques nécessaires à l'exploration de ces régions ont longtemps fait défaut. Les inventions du baromètre en 1643, de la montgolfière en 1782 puis des ballons météorologiques dans les années 1890 ont permis au français Terressenc de Bort et à l'allemand Richard Assmann de découvrir conjointement l'existence de la stratosphère en 1902.

Ce n'est donc que depuis 120 ans que s'est évanouie notre vision uniforme d'une atmosphère au sein de laquelle la température et la pression diminuent avec l'altitude jusqu'à laisser place au vide de l'espace. L'étude de la moyenne atmosphère et plus précisément de la stratosphère est donc un champ scientifique très récent. Dans les années 1980, l'avènement des instruments spatiaux a révolutionné ce domaine d'études en donnant accès aux scientifiques à une abondance de mesures qui était jusque-là hors de leur portée. La découverte du trou dans la couche d'ozone au pôle sud a également souligné l'importance des processus stratosphériques sur le système climatique global. Si le protocole de Montréal a banni en 1987 les substances responsables des destructions d'ozone extraordinaires identifiées quelques années plus tôt, de nombreuses questions restent aujourd'hui ouvertes sur l'avenir des niveaux d'ozone stratosphérique.

Depuis la fin des années 1980, les capacités instrumentales n'ont cessé d'être améliorées, tout comme notre connaissance globale du système climatique, de sa complexité et des multiples interactions entre les processus qui le composent. Suite au protocole de Montréal, les concentrations d'ozone stratosphérique devaient retrouver leur niveau d'avant 1980 au fil du XXI^{ème} siècle : aujourd'hui, il est estimé que cela se produira durant la seconde moitié du XXI^{ème} siècle [WMO, 2018]. Cependant, de nombreuses incertitudes planent sur ces prédictions. Différentes perturbations viennent aujourd'hui compliquer la lisibilité du devenir de la couche d'ozone. Au premier plan de celles-ci, les changements climatiques en cours sont complexes et impliquent des modifications parfois antagonistes des processus climatiques connus. La hausse des concentrations des gaz à effet de serre en troposphère y entraîne l'élévation des températures, et leur baisse en stratosphère. Cette dernière évolution, en partie discutée dans cette

thèse, impactera nécessairement la chimie de l'ozone. Le groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat (GIEC), créé en 1988 entre autres à la suite de la découverte du trou dans la couche d'ozone, expose aujourd'hui très clairement les conséquences du changement climatique et les difficultés à appréhender l'avenir à moyen terme du système climatique global.

D'autre part, l'évolution de la couche d'aérosols stratosphériques est un enjeu majeur, intimement liée à celle de la couche d'ozone. Ces aérosols, principalement d'origine volcanique, ont un impact radiatif et chimique qui influence les températures - locales et de surface - ainsi que les niveaux d'ozone en stratosphère. Le suivi des panaches injectés dans l'atmosphère par les volcans est également précieux pour la validation des modèles climatiques globaux. Les interactions entre les fortes concentrations en aérosols constatées après certaines éruptions et les processus destructeurs d'ozone posent encore question. La récente éruption historique du volcan Hunga Tonga-Hunga Ha'apai en janvier 2022 - historique par sa puissance et son impact stratosphérique - a montré que les conséquences atmosphériques du volcanisme sont encore l'objet de nombreuses recherches.

Par ailleurs, ces dernières années ont vu se multiplier les feux de biomasse majeurs, que l'on savait déjà capables d'injecter des particules en stratosphère [Fromm et al., 2000]. Les feux historiques au Canada en 2017 et en Australie en 2020 ont injecté en stratosphère des masses d'aérosols comparables celles émises par des épisodes de volcanisme modéré [Peterson et al., 2017, Khaykin et al., 2020]. Cela attire un fort intérêt scientifique pour plusieurs raisons. Tout d'abord, dans le contexte du changement climatique il est attendu de voir la fréquence des feux de grande ampleur augmenter. Le volcanisme, principale source d'aérosols stratosphériques, est considéré régulier et aucune tendance significative de la masse d'aérosols stratosphérique n'est connue à ce jour. Si les feux de biomasse devenaient une source importante d'aérosols et si celle-ci s'intensifiait, alors la question de l'évolution de la charge en aérosols en stratosphère se poserait. Une augmentation significative de la masse d'aérosols aurait un impact radiatif et chimique aux conséquences incertaines. Aussi, les feux de biomasse injectent des aérosols carbonés et non soufrés comme c'est le cas du volcanisme. Le comportement d'espèces carbonées en stratosphère est encore inconnu : leur forte absorption pourrait impacter les températures, mais leur implication dans les processus chimiques connus reste à étudier. Nos travaux, ainsi que de récentes publications, laissent à penser que ces aérosols impactent également l'ozone, compliquant davantage la prédictibilité des niveaux d'ozone stratosphérique.

Ces nouvelles problématiques questionnent nos capacités instrumentales. Cette thèse illustre notamment qu'il n'est parfois pas possible de statuer sur la composition chimique de certaines couches d'aérosols stratosphériques mesurées. Il n'est donc souvent pas possible de différencier aérosols soufrés et carbonés. Du reste, les modèles climatiques globaux peinent à prévoir convenablement les niveaux d'ozone en fin d'hiver, illustrant ainsi la difficulté de maîtriser tous les processus impactant la destruction saisonnière d'ozone et de les paramétriser adéquatement.

L'effort de recherche sur l'ozone stratosphérique a permis la mise en évidence des nuages stratosphériques polaires (PSC). Si depuis 1870 ces nuages ont été observés à de nombreuses reprises [Stanford and Davis, 1974],

leur composition, leurs mécanismes de formation ou encore leur implication dans la chimie de l'ozone étaient inconnus. L'avènement des instruments satellites à partir des années 1980 a bouleversé notre connaissance de la stratosphère, et avec elle celle des PSC. Les mesures occasionnelles par ballons ou avions ont laissé place à une abondance de données fournies par les satellites, révolutionnant la recherche atmosphérique. Cela a permis de suivre avec rigueur de nombreux paramètres du système climatique et d'en comprendre de nombreux processus. Ces mesures viennent alimenter des modèles climatiques globaux de chimie et de transport de plus en plus performants. Cependant, la mesure satellite est par nature plus délicate que son équivalent sol, présentant de fortes incertitudes. C'est pourquoi il reste nécessaire de maintenir des réseaux de mesures performants au sol, à l'image du réseau pour la détection des changements de composition atmosphérique (NDACC) ou encore du Aerosol Robotic Network (AERONET). Les instruments sol possèdent l'avantage de pouvoir évoluer rapidement et s'adapter aux besoins scientifiques récents, tandis que l'opération d'un instrument satellite implique des constantes de temps nécessairement plus importantes et une capacité d'intervention sur la configuration instrumentale restreinte.

Le maintien de capacités instrumentales performantes est un enjeu particulièrement critique dans les régions peu couvertes comme le sont les pôles. Les réseaux de mesures sont peu denses dans les régions polaires, et notamment au sud. Ces zones ne sont par ailleurs pas entièrement et constamment couvertes par les instruments satellites. Pourtant, les pôles se trouvent aujourd'hui à la croisée d'enjeux scientifiques. Le réchauffement climatique y est d'ores et déjà constaté à une ampleur considérable par rapport aux moyennes latitudes. Lors d'injection quantitative d'aérosols en stratosphère, la circulation atmosphérique générale transporte une partie des panaches jusqu'aux pôles, qui sont le lieu de la destruction saisonnière d'ozone. Les régions polaires cristallisent donc les questions qui planent sur le futur de la couche d'ozone stratosphérique.

Cette thèse propose d'étudier les phases condensées précurseurs de la destruction d'ozone stratosphérique et leurs perturbations stratosphériques à moyen terme à l'aide de la mesure lidar à hautes latitudes. Par perturbations sont ici entendus le changement climatique, le volcanisme et les feux de biomasse de grande ampleur impactant la stratosphère. Tout d'abord, le chapitre 1 introduit le contexte général, à savoir les spécificités dynamiques et chimiques de la stratosphère ainsi que les processus clés qui y prennent place, et pose le cadre de la thèse. Le chapitre 2 présente les instruments, les sources de données et les méthodes utilisés dans la suite du manuscrit. Le chapitre 3 consiste en une étude sur les mesures de PSC à DDU de 2007 à 2020. Cette étude inclut entre autres l'application des mesures de DDU aux classifications globales et la mise au point d'une tendance d'occurrences de PSC à DDU sur 14 ans. Dans le chapitre 4, l'impact stratosphérique des feux australiens de 2020 est présenté et les mesures inédites des aérosols émis par ces feux réalisées à DDU sont exposées et discutées. La difficile distinction entre couches d'aérosols et de PSC est notamment mise en exergue. Le chapitre 5 décrit la campagne d'intervention sur le lidar de DDU réalisée en 2022 visant à modifier la source laser, puis présente les mesures récentes d'aérosols volcaniques émis par l'éruption du volcan Hunga Tonga en 2022. Les nouvelles possibilités offertes par la modification du lidar sont mises à profit pour restituer la distribution en taille des aérosols volcaniques mesurés. Enfin, la dernière section présente les conclusions et les perspectives de ce travail de doctorat.

Chapitre 1

Aérosols et Nuages en Stratosphère, contexte général

1.1 Dynamique de la stratosphère

1.1.1 Les couches de l'atmosphère

L'atmosphère terrestre est généralement divisée en couches délimitées par les inversions successives du gradient vertical de température. Ces couches sont associées à des processus physico-chimiques et des dynamiques atmosphériques différents. Dans ce manuscrit, les deux couches considérées sont la troposphère et la stratosphère.

La troposphère, "sphère dynamique" étymologiquement, est la première couche en partant de la surface terrestre. Elle est caractérisée par une température décroissant avec l'altitude impliquant d'importants mouvements convectifs. Ce gradient négatif s'explique par l'absorption du rayonnement infrarouge émis par la Terre par les composants de l'atmosphère, principalement la vapeur d'eau présente en abondance proche de la surface. À une altitude qui dépend de la latitude et dans une moindre mesure de la saison, le gradient de température se stabilise et s'inverse pour devenir positif. Cette région, aussi appelée tropopause, est la limite entre la troposphère et la stratosphère et se situe approximativement à 8 km aux pôles et à 16 km à l'équateur. La troposphère est la couche la plus dense de l'atmosphère : elle en représente 80 à 90% de la masse et abrite la majeure partie des gaz de l'atmosphère, dont 99% de la vapeur d'eau totale.

La stratosphère, ou "sphère stratifiée", est située entre la tropopause et environ 50 km, où le gradient de température s'inverse de nouveau. Elle contient autour de 9,9% de la masse de l'atmosphère. La stratosphère est caractérisée par une forte concentration en ozone, qui explique son gradient de température positif. La couche d'ozone, située entre 15 et 30 km, absorbe les rayonnements solaires ultraviolets (UV) et réchauffe ainsi la basse

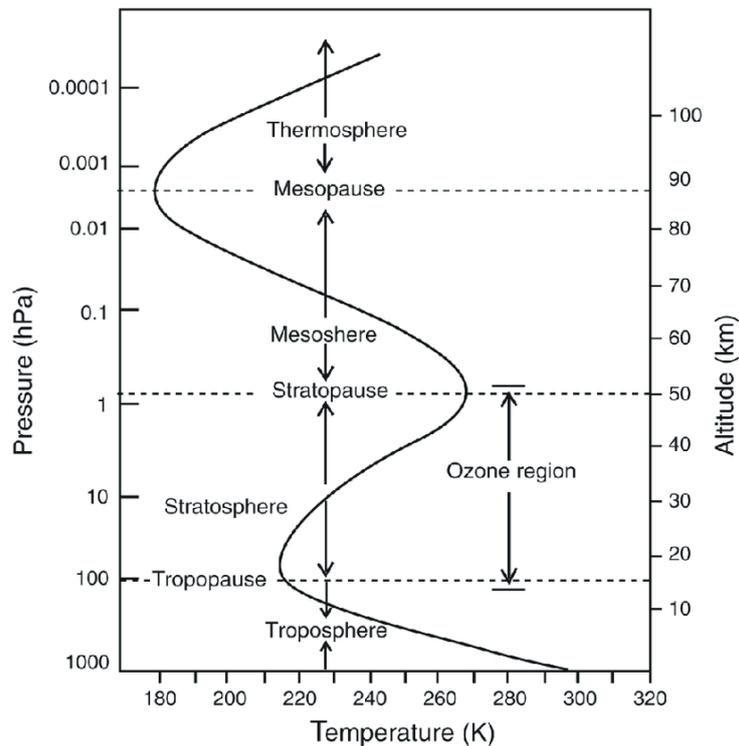


FIGURE 1.1 – Profil de température climatologique, en fonction de l'altitude et de la pression. La troposphère et la stratosphère sont délimitées par la tropopause, représentée par la ligne hachurée. Figure publiée par [Mohanakumar \[2008\]](#).

stratosphère. Ce réchauffement est contrebalancé par les émissions infrarouges dues au CO_2 et aux gaz à effet de serre en général. Ce gradient de température positif explique à son tour la faiblesse du transport vertical en stratosphère, et donc son caractère stratifié.

Aux alentours de 50 km, le réchauffement produit par l'absorption de la couche d'ozone ne permet plus de contrebalancer le refroidissement dû aux émissions infrarouges du CO_2 et le gradient de température s'inverse de nouveau : c'est la stratopause, la limite basse de la mésosphère. La mésosphère s'étend jusqu'à environ 80 km et la mésopause, matérialisée par une nouvelle inversion du gradient de température, pour laisser place à la thermosphère où l'absorption des rayonnements UV provoque une augmentation de la température.

1.1.2 La circulation de Brewer-Dobson

Les principaux mécanismes de la dynamique stratosphérique ont été décrits par les chercheurs Alan Brewer et Gordon Dobson au XX^{ème} siècle, qui ont depuis donné leurs noms au schéma de circulation correspondant. Comme mentionné précédemment, la stratosphère se caractérise par de faibles transports verticaux en raison du gradient thermique positif. Pour donner un ordre de grandeur, le transport est environ 1000 fois plus important dans la direction horizontale que verticale. La dynamique stratosphérique se décrit de manière saisonnière. En hiver, elle

est dominée par de forts vents zonaux appelés jets : les jets subtropicaux situés entre 30°S et 30°N et le jet polaire, situé à hautes latitudes. Ces jets permettent une homogénéisation zonale - c'est-à-dire le long de mêmes cercles de latitude - des espèces qui composent la stratosphère et affaiblissent les circulations méridionales, isolant donc la stratosphère d'hiver en trois zones distinctes : la zone intertropicale, la zone polaire et une zone intermédiaire dite de mélange.

Le moteur de la circulation de Brewer-Dobson est l'activité ondulatoire, dont les deux principales composantes sont les ondes de gravité et les ondes de Rossby, ou ondes planétaires. Les ondes de gravité ont une longueur d'onde de l'ordre de la dizaine de kilomètres, tandis que celle des ondes planétaires est de l'ordre du millier de kilomètres. Elles résultent pour les premières de la force de gravité et pour les secondes de la force de Coriolis, et sont déclenchées par l'orographie, les variations de relief à la surface, ou par la convection profonde. Cela explique que leur activité soit plus intense dans l'hémisphère nord, où les continents occupent une place plus importante. Leur activité est également plus importante dans l'hémisphère d'hiver où leur propagation verticale perturbe les jets et permet un mélange des espèces stratosphériques.

Par ailleurs, lors de la nuit polaire, les masses d'air situées à hautes latitudes ne sont plus chauffées par le rayonnement solaire et leur température chute fortement. Un fort gradient de température s'installe alors entre les hautes et moyennes latitudes. Ce fort gradient, couplé à l'affaiblissement des jets, déclenche un courant méridien des tropiques vers les hautes latitudes. Par conservation de la masse, ce courant méridien implique un courant ascendant aux tropiques. Cette advection aux tropiques amène de l'air troposphérique en stratosphère et constitue la principale source de matière en stratosphère. Des échanges entre masses d'air troposphériques et stratosphériques se produisent également dans une moindre mesure à moyennes latitudes, lorsque les surfaces isentropes – c'est-à-dire de même température potentielle – coupent la tropopause. À l'approche des hautes latitudes, le courant méridien de la stratosphère d'hiver est dévié par la force de Coriolis pour former un fort jet polaire que l'on appelle le vortex polaire. Ce vortex est une particularité dynamique majeure de la stratosphère, permettant l'isolement des masses d'air en son sein et la stabilisation d'une chimie dont l'exemple historique est celui de la chimie de l'ozone stratosphérique.

Dans la stratosphère d'été, l'activité ondulatoire est plus faible et le rayonnement solaire aux pôles ne déclenche pas un gradient de température similaire à celui observé en hiver, le transport isentropique est donc faible. Les masses d'air de la zone polaire et de la zone de mélange ne sont pas isolées. Le schéma de la Figure 2, issu de [Bönisch et al. \[2011\]](#), résume les principaux mécanismes de la circulation de Brewer-Dobson.

1.1.3 Le vortex polaire

La section précédente a expliqué comment, dans la stratosphère d'hiver, le gradient de température entre les hautes et moyennes latitudes induit par l'absence de rayonnement solaire aux pôles mène à la formation d'un fort

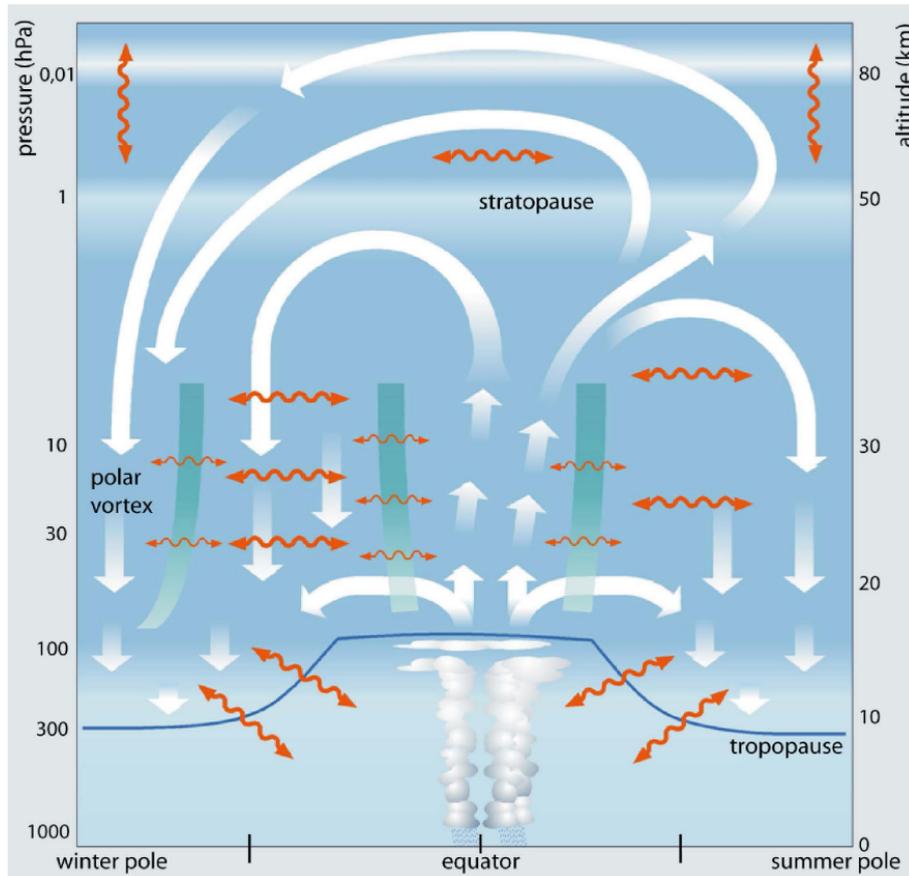


FIGURE 1.2 – Illustration schématique de la circulation de Brewer-Dobson. Les flèches blanches indiquent la circulation atmosphérique, les flèches doubles oranges représentent les processus de mélange bidirectionnels. Transport et mélange sont tous deux animés par l'activité ondulatoire (des ondes planétaires et de gravité). Les bandes vertes indiquent les barrières stratosphériques à la circulation et au mélange. Elles délimitent zones intertropicale, polaire et de mélange. Figure publiée par [Bönisch et al. \(2011\)](#).

jet polaire vers l'est, que l'on appelle vortex polaire. Ce vortex polaire se situe généralement autour de 65° de latitude et est globalement centré autour du pôle. Il est plus fort et plus stable dans l'hémisphère sud, car la forte activité ondulatoire de l'hémisphère nord l'y affaiblit. Il est fréquent dans l'hémisphère boréal que le vortex soit significativement déplacé voir rompu pendant l'hiver par cette importante activité ondulatoire.

Le jet polaire est plus fort à haute altitude où le gradient de température est plus intense, et il peut atteindre des vitesses supérieures à 100m/s . Lorsque le vortex est établi, il isole les masses d'air polaires de celles des moyennes latitudes. La stratosphère polaire, privée de rayonnement solaire, se refroidit alors significativement pour atteindre des températures de l'ordre de 180K . Ces températures permettent la formation des nuages stratosphériques polaires (Polar Stratospheric Clouds – PSC), qui sont intimement liés aux mécanismes de destruction de l'ozone stratosphérique et dont il sera question en détails dans les sections suivantes.

À la fin de l'hiver, le retour du rayonnement solaire à hautes latitudes ainsi que la baisse de l'activité ondulatoire affaiblissent le vortex polaire qui finit par se rompre, permettant de nouveau le mélange des masses d'air

stratosphériques des hautes et moyennes latitudes.

1.1.4 La tropopause tropicale

Comme cela a été évoqué dans la section 1.1.2, la tropopause tropicale est une sorte de porte d'entrée en stratosphère. Plutôt que de n'être vue comme une limite, la tropopause tropicale doit être vue comme une région, communément appelée la TTL (*Topical Tropopause Layer*, en anglais). La TTL est une couche intermédiaire qui présente des propriétés mixtes entre la troposphère et la stratosphère. Elle est définie comme s'étendant de la haute troposphère, où le profil de température se sépare de la tendance adiabatique classique ($\sim 10 - 12$ km, ~ 200 hPa), jusqu'à la zone de la stratosphère hors de l'influence de la circulation troposphérique (~ 20 km, ~ 50 hPa).

Cette région est cruciale pour comprendre le passage de constituants et de particules de la troposphère vers la stratosphère. Au sein de cette couche, de nombreux paramètres connaissent une rapide évolution verticale. C'est le cas des mouvements convectifs typiques de la troposphère, qui diminuent avec l'altitude, à mesure que la circulation de Brewer-Dobson commence à dominer. La concentration d'ozone augmente également avec l'altitude. Le point froid, c'est-à-dire le minimum de température, se situe au sein de cette couche entre 16 et 17,5 km. Il joue un rôle clé dans la composition de la stratosphère, en contribuant notamment à la déshydratation des masses d'air qui entrent en stratosphère, par condensation et par formation de nuages. Le refroidissement radiatif diminue également avec l'altitude.

Le temps de transport pour qu'une masse d'air passe de la proximité de la surface, où les précurseurs sont émis, à la stratosphère via la TTL est de l'ordre de quelques semaines voire de mois. Ce temps est variable et difficile à quantifier précisément, mais il est suffisamment long pour que les espèces à courte durée de vie soient transformées avant d'atteindre la stratosphère. De plus, seule une petite partie des masses d'air arrivant dans la TTL finit par effectivement entrer en stratosphère [SPARC, 2006].

1.2 La composition de la stratosphère et ses processus physico-chimiques clés

Après avoir présenté les principales caractéristiques de la dynamique stratosphérique, il convient d'en présenter la composition. Contrairement à la troposphère qui est riche d'une grande variété d'espèces chimiques et de particules (en raison de la proximité de la surface terrestre et plus récemment de l'activité anthropique), la stratosphère a une composition plus simple. Cette composition est également plus stable en raison des faibles transports verticaux. Le choix est fait de distinguer deux régimes pour présenter la composition et les mécanismes stratosphériques : un régime de fond, et un ensemble de perturbations venant modifier cet état initial. Dans cette section, le régime de fond sera présenté.

L'ozone est l'espèce caractéristique de la stratosphère, elle en régule la température et en explique la dynamique. C'est aussi dans cette couche que sa concentration est la plus élevée, ce qui fait la singularité de cette espèce et témoigne de l'existence d'une source d'ozone stratosphérique. Les mécanismes de production et de destruction de l'ozone stratosphérique ainsi que les enjeux liés à leur étude sont exposés dans cette section. Les espèces intervenant dans ces mécanismes sont ensuite introduites, à commencer par les phases gazeuses : les composés hydrogénés, azotés, chlorés et bromés. Enfin les phases condensées stratosphériques que sont les aérosols soufrés, ou aérosols de fond, et les nuages stratosphériques polaires (PSC) sont présentées.

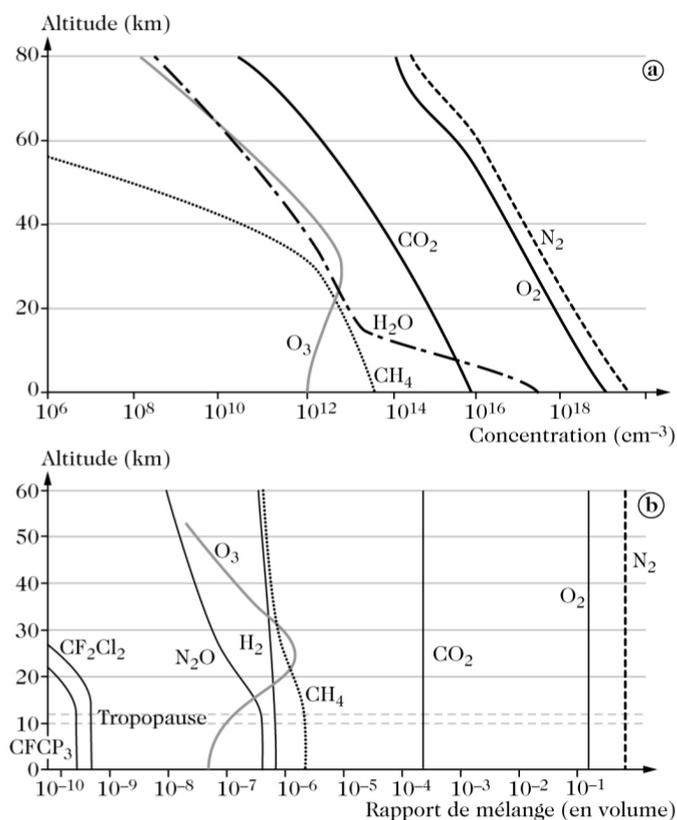


FIGURE 1.3 – (a) Concentration (cm^{-3}) et (b) rapport de mélange, en volume, des constituants majeurs en fonction de l'altitude. Cette figure est reproduite d'une présentation de Virginie Marécal du CNRS / Météofrance, disponible à l'adresse suivante : https://www.umr-cnrm.fr/ecole_lidar/IMG/pdf/16._vm_structure_atmosphere.pdf

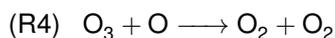
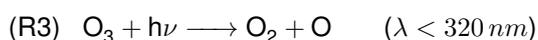
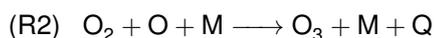
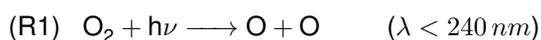
1.2.1 La chimie de l'ozone

La distribution verticale en concentration des principaux constituants atmosphériques présentée en figure 1.3 fait apparaître une spécificité de l'ozone ; c'est la seule espèce dont la concentration atteint son maximum en stratosphère. Des réactions de production et de destruction y ont lieu et sont intimement liées à la dynamique de cette couche. Si l'ozone troposphérique, dont les pics sont d'origine anthropique, est un enjeu de santé publique, l'ozone stratosphérique constitue en revanche une couche protectrice. L'absorption des rayonnements UV que cette couche

permet en protège les organismes vivants.

Le cycle de Chapman

Si l'on ne considère que les espèces oxygénées, les réactions de production et de destruction de l'ozone sont décrites par le cycle de Chapman (1929). Le cycle débute par la photodissociation du dioxygène en deux atomes d'oxygène (R1). Un atome d'oxygène réagit ensuite avec du dioxygène pour former une molécule d'ozone et dégager de la chaleur (R2). Ce dégagement est la principale source de chaleur en stratosphère. L'ozone produit est à son tour dissocié par le rayonnement solaire (R3), pour donner un atome d'oxygène et une molécule de dioxygène. L'ozone réagit également avec un atome d'oxygène pour former deux molécules de dioxygène (R4). Enfin, en présence d'un troisième corps, deux atomes d'oxygène se combinent pour donner une molécule de dioxygène (R5). L'équilibre de ce cycle donne donc deux molécules de dioxygène pour deux d'ozone, soit $2 O_3 \longrightarrow 3 O_2$. Dans les réactions (R2) et (R5) M représente une espèce indéterminée, qui dans l'atmosphère est généralement N_2 ou O_2 en raison de leur forte abondance. Il est à noter que les réactions R2 et R3 présentent une cinétique significativement plus importante que R1, R4 et R5, et ce sont donc ces dernières qui contrôlent la cinétique du cycle de Chapman.



Le cycle est alimenté par le rayonnement solaire et est ainsi plus efficace aux tropiques qu'aux pôles. La circulation de Brewer-Dobson assure ensuite la distribution de l'ozone jusqu'aux hautes latitudes. Cependant, le cycle de Chapman ne permet pas d'expliquer les niveaux d'ozone observés dans la stratosphère. En compilant les vitesses de réactions de production et de destruction d'ozone, il est possible de simuler le profil d'ozone prévu par le cycle de Chapman. Cela a été réalisé par [Jacob \[1999\]](#), dont la figure correspondante est reproduite en figure [1.4](#). Ce profil indique des concentrations d'ozone simulées significativement supérieures aux observations.

Les cycles catalytiques de destruction de l'ozone

Dans les années 1960 et 1970, la mise en évidence de cycles catalytiques destructeurs d'ozone a permis d'expliquer une part supplémentaire des pertes d'ozone observées [\[Crutzen, 1970\]](#), [\[Molina and Rowland, 1974\]](#), ce qui a valu à ces chercheurs le prix Nobel de chimie 1995. Les catalyseurs ne sont par définition pas consommés par les réactions qu'ils catalysent et peuvent ainsi participer à la destruction de très nombreuses molécules d'ozone malgré leur faible concentration relative. Ici les catalyseurs sont les composés hydrogénés (HO_x), azotés (NO_x), chlorés (ClO_x) et bromés (BrO_x) et participent au cycle suivant, où X représente OH, NO, Cl ou Br.

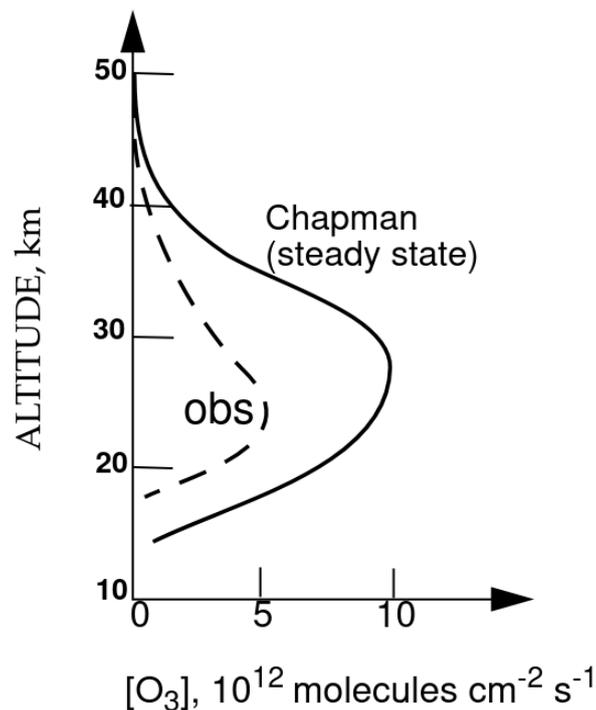
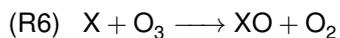
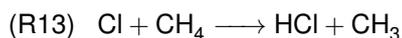
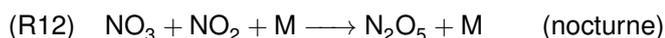
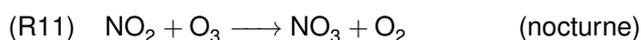
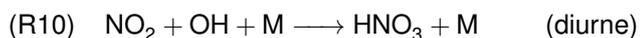
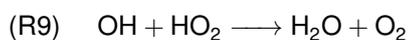


FIGURE 1.4 – Concentrations d’ozone en fonction de l’altitude simulée à partir du cycle de Chapman seul (ligne pleine) et mesurée (en pointillés). Figure adaptée de [Jacob \[1999\]](#)

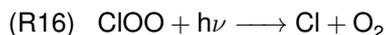
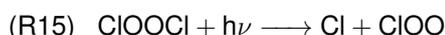


Contrairement au cycle de Chapman, ces derniers font intervenir des espèces radicalaires et sont donc très réactifs. Une même molécule de catalyseur peut participer à la destruction de 100 à 10000 molécules d’ozone [WMO, 2018](#). Ces quatre cycles se terminent lors de la désactivation des espèces radicalaires permise par les réactions (R9-14) suivantes.

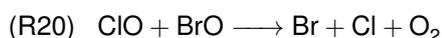
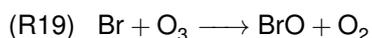
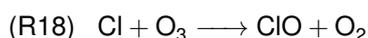


Ces cycles expliquent une part supplémentaire de la destruction saisonnière d’ozone, mais ne parviennent toujours pas à justifier les fortes déplétions découvertes au dessus de l’Antarctique dans les années 1980. En effet, durant l’hiver polaire la photodissociation produisant les atomes d’oxygène n’est pas opérante et la réaction

R8 est donc limitée. Des missions in-situ ont ensuite mis en évidence des concentrations très importantes de ClO coïncidant à ces destructions d'ozone stratosphérique. Ces découvertes mènent à l'identification des deux cycles catalytiques suivants, dans lesquels interviennent ClO et Br.



et

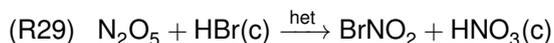
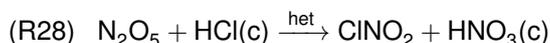
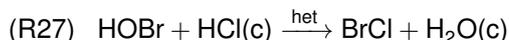
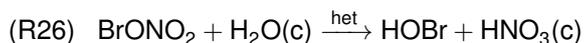
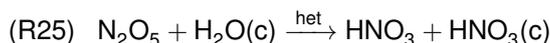
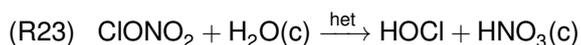


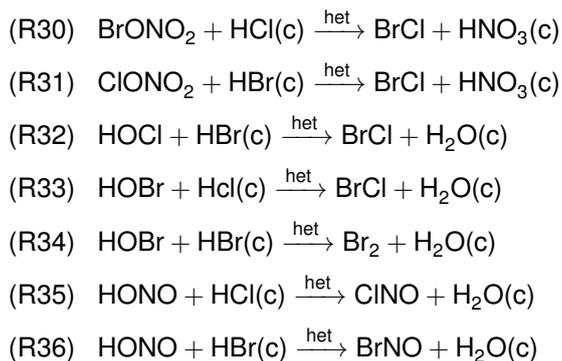
Le bilan de ces deux cycles est $2\text{O}_3 \longrightarrow 3\text{O}_2$. Leur efficacité en fin d'hiver et au printemps s'explique par l'absence d'atome d'oxygène dans leurs réactions élémentaires. La terminaison de ces cycles est assurée par la réaction suivante, qui élimine également le NO_2 radicalaire : (R21) $\text{ClO} + \text{NO}_2 \longrightarrow \text{ClONO}_2$

ClONO_2 et HCl sont des espèces non radicalaires et sont considérées comme des espèces réservoirs en stratosphère car il ne réagissent pas avec l'ozone. Si les cycles R14-17 et R18-20 expliquent la destruction observée d'ozone stratosphérique, il reste à expliquer les fortes concentrations de ClO détectées.

Les réactions hétérogènes

Ces fortes concentrations de ClO s'expliquent par des réactions hétérogènes, c'est-à-dire des réactions chimiques entre phases gazeuse et condensée. De telles réactions ont lieu pendant l'hiver polaire à la surface et au sein des aérosols stratosphériques et des PSC lorsque la température chute suffisamment pour permettre leur formation. Ces réactions de chimie hétérogène activent les espèces dites réservoirs et forment du Cl_2 , rapidement photolysé en Cl pour produire du ClO, venant ainsi renforcer la destruction d'ozone. Les réactions hétérogènes en question sont les suivantes :





Parmi ces réactions, toutes ne sont pas significatives. Les réactions R22-24 sont majoritaires et permettent un titrage rapide de HCl et ClONO₂ au début de l'hiver, dès que les températures stratosphériques passent sous 195 K [Tritscher et al., 2021]. La réaction R25 diminue la quantité de NO_x actif disponible et empêche donc la désactivation de ClO par la réaction R21. Les réactions suivantes, R26-36, permettent l'activation additionnelle des espèces chlorées et bromées pendant l'hiver mais n'ont qu'un impact marginal sur la destruction saisonnière d'ozone stratosphérique. L'évolution schématique de l'abondance des différentes formes de chlore en stratosphère au fil de l'hiver et de l'évolution des températures est résumée par la figure 1.5, reproduite de [Tritscher et al., 2021].

Lorsque la masse des PSCs devient significative, ces derniers sédimentent et retirent irréversiblement l'acide nitrique qu'ils contiennent de la stratosphère. Lorsque le vortex se réchauffe et que le rayonnement solaire atteint de nouveau les masses d'air qu'il enferme, la photolyse de HNO₃ permet la reformation des espèces réservoirs NO et NO₂. En l'absence de HNO₃, ce mécanisme est inhibé et la destruction d'ozone s'en trouve prolongée. La dénitrification s'accompagne également d'une déshydratation, qui quant à elle modère légèrement la déplétion d'ozone en limitant la formation de nouveaux PSCs.

Le trou de la couche d'ozone

Dans les années 1980, la découverte du trou de la couche d'ozone au dessus de l'Antarctique a mené à la mise en évidence du rôle des chlorofluorocarbures (CFC, ou fréons) dans la destruction additionnelle d'ozone. Ces composés étaient produits industriellement en raison de leur faible coût, de leur caractère ininflammable et de leur stabilité. Ils étaient principalement utilisés dans les industries du froid, des nettoyeurs industriels, des propulseurs et des mousses isolantes. En raison de leur caractère inerte, les CFC ne sont pas dissociés en troposphère et peuvent donc atteindre la stratosphère où ils sont cette fois dissociés pour y libérer un atome de chlore actif. Cet apport supplémentaire en chlore est la raison de la diminution impressionnante de la couche d'ozone entre les années 1970 et 1990. La figure 1.6 illustre la diminution de la colonne totale d'ozone en fin d'hiver en comparant les années 1970 et les années 2000.

Suite à cette découverte, la production des CFC a été interdite par le protocole de Montréal en 1987 et par ses

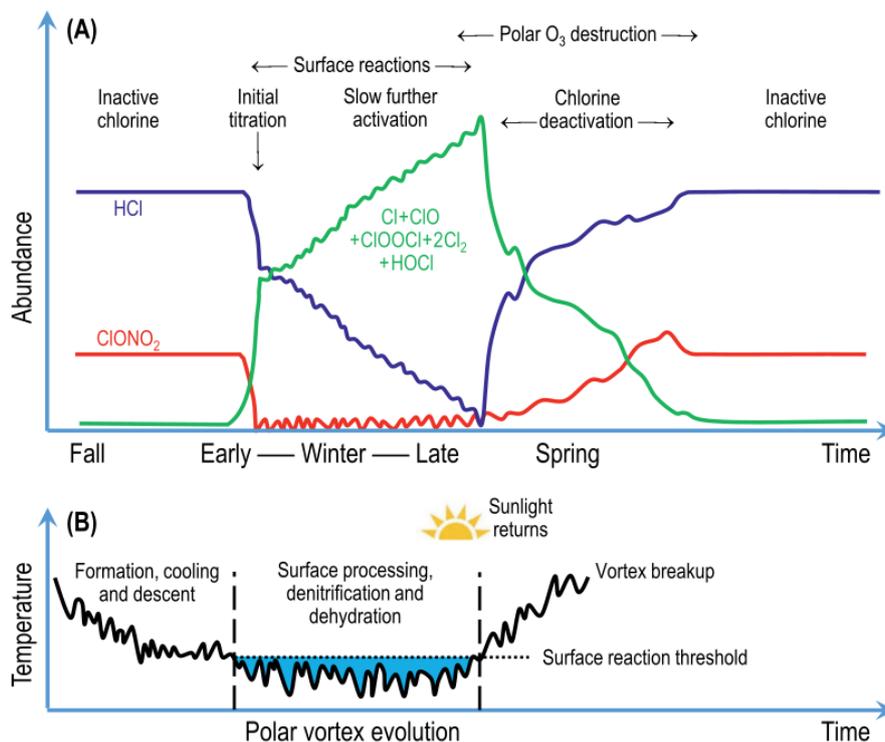


FIGURE 1.5 – Représentation schématique de l'évolution saisonnière du chlore inorganique et de la température au sein du vortex en basse stratosphère, en fonction du temps. Avant la formation du vortex, la plupart du chlore inorganique est présent sous forme de HCl et ClONO₂ (A). Lorsque la température chute sous un certain seuil (B), ces espèces réservoir sont converties en formes actives de chlore (Cl, ClO, ClOOCl, Cl₂ et HOCl). Durant l'hiver, la sédimentation des particules de NAT et de glace abaisse les concentrations de H₂O et HNO₃, ce sont la dénitrification et la déshydratation. Au retour de la lumière l'ozone est détruite rapidement, notamment par les cycles catalytiques ClO + ClO et BrO + ClO. À la fin de l'hiver, le chlore actif est de nouveau converti en espèce réservoir par les réactions $\text{Cl} + \text{CH}_4 \longrightarrow \text{HCl} + \text{CH}_3$ et $\text{ClO} + \text{NO}_2 + \text{M} \longrightarrow \text{ClONO}_2 + \text{M}$. À la rupture du vortex, les niveaux d'ozone remontent suite aux mélanges des masses d'air stratosphériques, et la partition du chlore inorganique en HCl et ClONO₂ est rétablie. Figure publiée par [Tritscher et al. \[2021\]](#).

amendements qui ont suivi. Des substituts ont été trouvés, notamment les HCFC, qui présentent l'avantage d'être dissociés en troposphère. Depuis l'abolition des CFC, le niveau de la couche d'ozone augmente peu à peu et les modèles prédisent qu'il retrouvera son niveau d'avant les années 1960 entre la moitié et la fin du XXI^{ème} siècle, même si de nombreuses incertitudes planent sur ces prédictions.

Maintenant que les mécanismes régissant la production et la destruction de l'ozone stratosphérique ont été exposés, les espèces y intervenant sont introduites. Les sections suivantes détaillent leurs sources et leurs puits ainsi que leurs caractéristiques principales. Après un rapide tour d'horizon des différentes phases gazeuses, les phases condensées intervenant dans les réactions de chimie hétérogène décrites précédemment sont présentées.

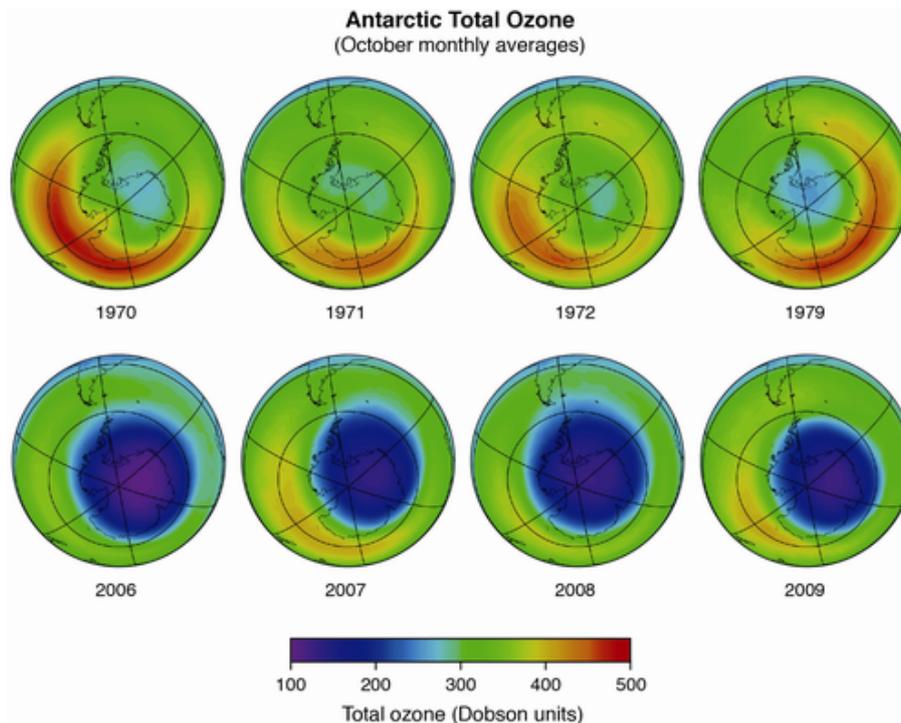


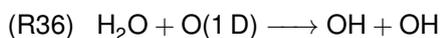
FIGURE 1.6 – Colonne totale d’ozone au dessus du pôle sud en octobre, avant et après l’émission massive de CFC et de substances destructrices d’ozone. Figure publiée par la NOAA, consultée en juin 2022 à l’adresse suivante : <https://www.nrdc.org/experts/david-doniger/update-poles-apart-latest-saving-ozone-layer>

1.2.2 Les phases gazeuses en stratosphère

La stratosphère a une composition chimique plus simple que la troposphère. Comme détaillé précédemment, l’ozone en est l’espèce caractéristique. Les composants principaux de l’atmosphère que sont le diazote, l’oxygène, le dioxyde de carbone y sont également présents. La plupart des constituants présents en troposphère y sont consommés et n’atteignent pas la stratosphère, ou à l’état de traces. Cependant, cela a été développé dans la section précédente, des espèces à l’état de traces peuvent avoir un impact significatif sur la chimie globale de l’atmosphère via leur participation à des cycles catalytiques. Dans cette section, les quatre familles de composés intervenant dans les cycles catalytiques de l’ozone que sont les composés hydrogénés, azotés, chlorés et bromés sont passés en revue. Leurs sources et puits sont identifiés et leur abondance et temps de vie discutés. Concernant les sources, deux cas se distinguent : soit ces particules sont produites en stratosphère par des réactions chimiques entre constituants ou par réaction photochimique, soit elles sont produites en troposphère puis transportées en stratosphère par la circulation atmosphérique. Dans ce second cas, les deux vecteurs principaux sont l’advection aux tropiques et le transport à travers la tropopause des moyennes latitudes le long des surfaces isentropes. Une fois en stratosphère, les constituants sont distribués par la circulation atmosphérique générale.

Les composés hydrogénés : HO, HO₂

Les sources de composés hydrogénés sont principalement naturelles. La stratosphère, bien que relativement sèche, contient de la vapeur d'eau, de l'ordre de 5 ppm. Cette vapeur d'eau provient de la troposphère. La vapeur d'eau réagit avec un atome d'oxygène selon la réaction suivante :



Le radical OH ainsi produit participe au cycle catalytique précédemment décrit R6-R8 qui s'achève par la réaction de terminaison R9, par laquelle la vapeur d'eau stable est reformée. Le temps de vie du OH stratosphérique étant court et sa production dépendant du rayonnement solaire, son abondance présente une forte variabilité spatiale et temporelle.

Les composés azotés : NO, NO₂, HNO₃

Les composés azotés ont des sources variées en troposphère, autant naturelles qu'anthropiques. Les NO_x sont principalement émis dans l'atmosphère par la combustion d'énergie fossile, par l'aviation, la combustion de biomasse, l'émission des sols, ou encore par les éclairs, par ordre d'importance décroissante. Les activités anthropiques émettent de grandes quantités de NO_x. Le monoxyde d'azote (NO) est généralement oxydé en HNO₃ et éliminé dans la troposphère, et la part mineure qui atteint la stratosphère est négligeable. La source principale de NO dans la stratosphère provient de la réaction suivante entre le protoxyde d'azote (N₂O) et un atome d'oxygène excité : N₂O + O(1 D) → 2 NO. En basse stratosphère, la concentration en N₂O est de l'ordre de 100 à 300 ppb. Son émission en troposphère est due en grande partie à l'activité agricole et à l'utilisation d'engrais.

	Taux, en Tg .an ⁻¹ Estimations et incertitudes
Sources naturelles	9 (6 - 12)
Océans	3 (1 - 5)
Sols tropicaux	4 (3 - 6)
Sols tempérés	2 (0,6 - 4)
Sources anthropogéniques	6 (4 - 8)
Sols cultivés	4 (2 - 5)
Feux de biomasse	0,5 (0,2 - 1)
Industrie chimique	1,3 (0,7 - 1,8)
Bétail	0,4 (0,2 - 0,5)
Puits - Stratosphère	12 (9 - 16)
Augmentation atmosphérique	4

TABLE 1.1 – Bilan global de N₂O, adapté de [Jacob \[1999\]](#)

Le NO produit participe au cycle catalytique R6-R8, et le principal puits de NO_x est son oxydation en HNO₃, qui est une forme stable, selon la réaction R10. Sous cette forme, HNO₃ est ensuite éliminé par précipitation ou par dépôt sec. En troposphère, les NO_x ont un temps de vie de l'ordre de la journée. Mais en présence de fortes

concentrations de NO_x , la formation de la molécule stable PAN (nitrate de peroxyacétyle, $\text{CH}_3\text{C}(\text{O})\text{OONO}_2$) peut avoir lieu et cette molécule peut, selon la température, présenter un temps de vie bien plus long que les NO_x seuls et ainsi assurer leur transport et leur restitution sur de longues distances. Le PAN est toxique pour l'homme et les organismes vivants en général, il est un marqueur des pics de pollution à l'ozone troposphérique causés par l'activité anthropique.

Les composés chlorés : Cl, ClO

Les CFC et solvants chlorés sont la source majeure de chlore dans la stratosphère, et sont d'origine anthropique. Ces substances sont inertes en troposphère et sont donc transportées jusqu'en stratosphère. Elles y sont ensuite photolysées pour libérer un atome de chlore. Ces espèces ont des durées de vie extrêmement longues en troposphère, allant de 10 à 100 ans. Si elles sont en grande majorité interdites par le protocole de Montréal, des émissions ont encore été détectées récemment [WMO, 2018].

Il est à noter que les éruptions volcaniques injectent épisodiquement du HCl directement en stratosphère, mais cela représente une part minoritaire des sources de chlore. En effet HCl est soluble dans l'eau et lors d'une éruption, il est rapidement éliminé par précipitation ou sédimentation lorsque les gouttelettes dans lesquelles il est dissout sont emportées par de plus gros débris [Tabazadeh and Turco, 1993]. Dans le cas d'éruptions majeures comme celles du El Chichon (1982) ou du Pinatubo (1991), ces mécanismes ne suffisent pas à éliminer les quantités importantes de HCl émises, et la quantité de chlore stratosphérique augmente, renforçant les mécanismes de destruction d'ozone. HCl constitue par ailleurs un puits pour le chlore stratosphérique car il finit par retourner en troposphère, par sédimentation et est éliminé lors des précipitations en raison de sa solubilité dans l'eau. Il existe aussi une source naturelle de CH_3Cl produit par des micro-organismes océaniques qui atteint la stratosphère, mais sa proportion est minoritaire par rapport aux autres sources.

Avant d'en être éliminé, il est estimé qu'un atome de chlore en stratosphère détruit environ 10000 molécules d'ozone par les processus catalytiques décrits précédemment. [Baird et al., 2016].

Les composés bromés : Br, BrO

Les sources de brome stratosphérique sont de deux types : naturelle et anthropique. La composante naturelle est émise par la biosphère océanique sous forme de CH_3Br . Le CH_3Br a une durée de vie limitée en troposphère, inférieure à 1 an, il y est donc consommé mais une partie atteint la stratosphère, où il est photodissocié pour libérer l'atome de brome qui pourra ensuite participer aux cycles catalytiques de destruction d'ozone. La composante anthropique, majoritaire, est relâchée sous forme de halons tels que CF_3Br et CF_2ClBr , qui sont, comme les CFC, inertes en troposphère et atteignent donc la stratosphère. Ces composés ont, comme les CFC, des durées de vie en troposphère qui dépassent la décennie.

Le brome stratosphérique n'est, en comparaison avec le chlore, que peu présent sous forme de réservoir, car la réaction menant à la formation de bromure d'hydrogène à partir d'une molécule de brome et de méthane est lente en raison de son caractère endothermique. Les formes inactives du brome, HBr et BrONO₂ sont de plus efficacement photodissociées par le rayonnement solaire et n'ont donc pas de longues durées de vie. Malgré son caractère davantage actif et donc potentiellement davantage destructeur d'ozone, l'abondance relativement faible du brome en comparaison avec le chlore lui procure un impact global moindre sur l'ozone.

1.2.3 Les aérosols stratosphériques

La section 1.2.2.3 a exposé comment, pendant l'hiver, des réactions hétérogènes sont rendues possibles par les températures extrêmement basses atteintes au sein du vortex polaire. Ces réactions hétérogènes ont lieu à la surface et au sein des aérosols stratosphériques et des PSC. Dans cette section, la nature et l'origine des aérosols stratosphériques sont tout d'abord introduits. Dans un second temps, les mécanismes liés aux PSC sont détaillés : leur formation, leur composition, les différents types identifiés ainsi que leurs répartitions spatiale et temporelle.

La basse stratosphère abrite une couche d'aérosols, environ entre 15 et 25 km, parfois appelée la couche de Junge d'après Christian Junge, qui l'a mise en évidence à l'aide de mesures in situ en 1960 [Junge and Manson, 1961]. Elle est la résultante de nombreux processus de transport et de chimie atmosphériques. Elle résulte d'abord des divers échanges entre la troposphère et la stratosphère et d'autre part des processus chimiques et microphysiques qui mettent en jeu les constituants transportés lors de ces échanges.

Tout d'abord, il faut présenter la composition des aérosols stratosphériques ainsi que les espèces qui en sont à l'origine, dites précurseurs. Les aérosols stratosphériques sont présents en grande majorité sous forme liquide et composés de soufre et de vapeur d'eau. À l'état de traces et selon les conditions de température, d'autres constituants comme de l'acide nitrique peuvent pénétrer ces aérosols. Des aérosols non liquides, qu'ils soient d'origine troposphérique ou extraterrestre, sont également présents en stratosphère. Localement, ils peuvent représenter une part significative de la masse d'aérosols. Les aérosols d'origine météoritique pourraient ainsi représenter plus de 10% de la masse totale d'aérosols stratosphériques [SPARC, 2006].

La chimie du soufre

Pour comprendre les mécanismes qui mènent à la formation des aérosols stratosphériques, il faut aborder rapidement le cycle du soufre. Le soufre a de nombreux états d'oxydation, de -2 à +6. Si l'on excepte les réactions de photodissociation, l'état d'oxydation des particules soufrées injectées dans l'atmosphère ne peut qu'augmenter en raison du caractère oxydant de l'atmosphère terrestre. Il en résulte que les particules soufrées dans l'atmosphère qui ne sont pas éliminées par des puits à la surface sont à terme transformées en H₂SO₄. L'absence de réaction atmosphérique significative de réduction du soufre implique que le cycle d'oxydation du soufre ne peut pas être

fermé par des processus atmosphériques. Sa terminaison est assurée par des organismes biochimiques. Sans ces organismes, les niveaux bas d'oxydation du soufre ne seraient pas observés en quantités significatives dans l'atmosphère et leur absence serait critique car les constituants soufrés à hauts états d'oxydation n'atteignent pas la stratosphère et sont éliminés en troposphère [Kremser et al., 2016]. Une interruption de la participation des organismes biochimiques au cycle du soufre aurait pour conséquence d'appauvrir la stratosphère en soufre. Ce raisonnement exclut le volcanisme, qui injecte directement du dioxyde de soufre dans la stratosphère.

En troposphère, les formes réduites du soufre réagissent rapidement avec le radical OH, ce qui réduit leur durée de vie, de l'ordre du jour à la semaine. En présence de nuages, cette durée de vie est encore réduite car l'oxydation de SO₂ en H₂SO₄ est plus rapide en phase aqueuse. En basse stratosphère, la durée de vie du SO₂ atteint plusieurs semaines en raison de la faible concentration en vapeur d'eau et en radical OH. Les OCS (oxysulfure de carbone) sont photodissociés par les rayonnements UV et cette photodissociation est donc plus efficace en stratosphère. Les OCS sont convertis en SO₂, par photodissociation ou plus minoritairement par réaction avec O et OH. La section suivante se concentre sur les sources du soufre stratosphérique, qui sont donc principalement SO₂ et OCS.

Sources du soufre stratosphérique

Le flux net total de soufre de la troposphère vers la stratosphère est estimé à 181 Gg/an en excluant les aérosols primaires, et à 103 Gg/an en les incluant [Sheng et al., 2015]. Ce flux se compose principalement des apports en SO₂, en OCS et pour une part plus marginale en autres formes réduites du soufre.

Le précurseur principal des aérosols stratosphériques est l'acide sulfurique, H₂SO₄. L'acide sulfurique gazeux est très rapidement consommé en troposphère et a une durée de vie de l'ordre de quelques minutes [SPARC, 2006]. Sa formation en stratosphère passe donc par l'oxydation des autres formes réduites du soufre.

Les sources de SO₂ sont dominées par les éruptions volcaniques et les activités anthropiques. Les émissions anthropiques proviennent principalement de la combustion d'énergies fossiles et de l'activité industrielle. Bien que ces processus soient encore mal quantifiés, des processus convectifs permettent à une partie de ces émissions à basse altitude d'atteindre la stratosphère [Eckhardt et al., 2004]. Les éruptions volcaniques sont l'autre source majeure de soufre stratosphérique, principalement sous forme de SO₂ et dans une moindre mesure de OCS. Par leur nature, ces éruptions sont très variables. Malgré cette forte variabilité, Carn et al. [2016] estiment l'apport annuel stratosphérique en SO₂ des éruptions volcaniques de l'ordre de 1 Tg/an, ce qui montre l'importance du volcanisme comme source de soufre stratosphérique. L'influence du volcanisme sur la stratosphère sera détaillée davantage dans les dernières sections de ce chapitre.

L'oxysulfure de carbone (OCS) est une source significative de soufre en stratosphère. La faible solubilité de cette espèce est la raison pour laquelle elle atteint la stratosphère sans être éliminée au cours de l'advection tropicale. En troposphère, les principales sources de OCS sont, par ordre d'importance, les océans, les émissions anthropiques, la combustion de biomasse, les sols humides, les éruptions volcaniques et la végétation. La végétation est le

principal puits troposphérique, devant les sols oxydés, l'oxydation par OH ou O(1 D) et enfin la photodissociation.

Dans l'atmosphère, il s'agit de la forme réduite du soufre la plus abondante et dotée de la plus longue durée de vie. En troposphère, OCS a un temps de vie long, de l'ordre de 2 à 5 ans selon les estimations [Montzka et al., 2007, Ullshöfer and Andreae, 1997]. Cette variabilité provient des incertitudes sur les amplitudes respectives des différentes sources et puits des OCS troposphériques. Selon les modèles, les estimations du poids des OCS dans les précurseurs d'aérosols stratosphériques varient, mais sont de l'ordre de 30 à 40 Gg/an, représentant un peu moins de la moitié des apports annuels de soufre gazeux en stratosphère [Weissenstein et al., 1997, Takigawa et al., 2002, Brühl et al., 2012, Sheng et al., 2015].

D'autres sources d'espèces soufrées existent, bien qu'elles soient plus marginales. Ils s'agit principalement des émissions de sulfure de diméthyle (DMS), de sulfure d'hydrogène (H₂S) et de disulfure de carbone (CS₂). Ces espèces ont une durée de vie réduite, de l'ordre de quelques heures, car elles sont rapidement oxydées par le radical OH. Cette oxydation produisant du SO₂, elles représentent toutefois une source indirecte de soufre stratosphérique. Enfin, la réaction de CS₂ et DMS produit des OCS, qui comme cela a été mentionné est une source importante de soufre en stratosphère.

Enfin, il existe des sources non soufrées d'aérosols stratosphériques. Cela concerne principalement des particules d'origine météoritique : leur apport est mal quantifié mais leur rôle dans la stratosphère est bien établi, notamment en tant que noyaux de nucléation pour la formation d'aérosols soufrés ou de particules de PSCs [Chang et al., 1999, Wise et al., 2003]. Bien que mal quantifiée, la proportion de matériel d'origine météoritique serait significative [Plane, 2012]. Au delà du SO₂ et des OCS déjà mentionnés, les éruptions volcaniques injectent parfois des cendres et diverses espèces et particules dans la stratosphère. Ces injections ont une influence modérée car les particules grossières sont rapidement évacuées par la sédimentation, mais leur impact est encore méconnu, notamment en raison de la difficulté de mesurer leur composition exacte. Leur impact est probablement radiatif et de court terme.

Le carbone suie (BC, *black carbon*) et le carbone organique, dont les sources sont principalement la combustion d'énergies fossiles et de biomasse, sont présents dans la stratosphère. Ils le sont principalement aux tropiques et à basse altitude, car ils n'ont pas de source stratosphérique. Cependant, des études récentes tendent à prouver que leur présence stratosphérique est sous estimée [Martinsson et al., 2019]. Leur principale propriété est d'être très absorbants et cela pourrait avoir un impact sur la température de la basse stratosphère. Enfin, les feux de forêts de grande ampleur sont capables d'injecter du matériel en stratosphère. Ils semblent être une source croissante de particules stratosphériques dont il sera question en détail dans les sections à venir. Ces émissions n'étaient jusqu'à récemment pas considérées comme significatives en stratosphère mais leur fréquence et leurs impacts sont encore méconnus.

Processus de transport

Les vecteurs d'échanges entre la troposphère et la stratosphère ont en partie été abordés dans les sections précédentes. Il s'agit de ceux mentionnés dans le schéma de circulation de Brewer-Dobson : une advection verticale aux tropiques qui alimente la stratosphère sur le long terme et des échanges bidirectionnels à travers la tropopause extra-tropicale. À cela il faut ajouter les injections directes et ponctuelles de matériel en stratosphère causées par les éruptions volcaniques et les feux d'ampleur. Enfin, des processus de convection profonde aux tropiques peuvent injecter des masses d'air en stratosphère sur des échelles plus courtes que celles de l'advection verticale aux tropiques, mais ces processus sont encore mal quantifiés [Kremser et al., 2016].

Il est important de préciser que les masses d'air pénétrant en stratosphère aux tropiques, via la TTL, atteignent la haute stratosphère ($\theta > 380\text{K}$) et peuvent rester en stratosphère à l'échelle d'années. Au delà de 380 K, les lignes isentropes ne croisent plus la tropopause à moyennes et hautes latitudes. En revanche, les particules entrant en stratosphère par le transport isentropique à moyennes latitudes n'y resteront que quelques mois. Pour les panaches injectés par les éruptions volcaniques, le temps de résidence est donc principalement fonction de la latitude d'injection, et dans une moindre mesure de l'altitude d'injection. Les injections causées par les éruptions volcaniques seront abordées en section 1.3.2.

Formation, croissance et élimination

Dans les conditions stratosphériques, la nucléation binaire de l'acide sulfurique et de la vapeur d'eau gazeux pour former des aérosols liquides est bien établie. Il s'agit généralement de nucléation homogène, mais la nucléation hétérogène sur des particules météoritiques est possible bien qu'encore mal quantifiée. Les aérosols ainsi créés grossissent ensuite par coagulation et condensation. La coagulation est le processus par lequel deux particules entrent en collision pour n'en former qu'une. La condensation désigne l'absorption de phase gazeuse par un aérosol liquide, dans ce cas de vapeur d'eau ou d'acide sulfurique en phase gazeuse. Ces deux processus sont à l'œuvre dans la croissance des aérosols stratosphériques, la coagulation ayant principalement lieu peu après la nucléation, alors que la condensation se poursuit pendant toute la durée de vie de l'aérosol en fonction des conditions de température et des concentrations environnantes en vapeur d'eau et en acide sulfurique. La coagulation, étant dépendante des collisions entre particules, est principalement fonction de la concentration et de la taille des aérosols.

Lorsque la température est trop élevée, les aérosols s'évaporent pour retourner à l'état gazeux. Sous l'effet de la gravitation les aérosols sédimentent vers la basse stratosphère, voire sont transportés vers la troposphère. Ces deux mécanismes contraignent la localisation de la couche d'aérosols. Par ailleurs, la sédimentation contraint également la taille des aérosols stratosphériques : lors de l'advection verticale des masses d'air aux tropiques, les particules les plus grosses sédimentent. Si bien qu'en dehors des périodes d'injection récente par le volcanisme, les

aérosols stratosphériques présentent un rayon moyen d'environ $0.07\mu\text{m}$ et inférieur à $0.2\mu\text{m}$ [SPARC, 2006]. Au delà de la sédimentation et de l'évaporation, l'élimination des aérosols stratosphériques est dominée par le transport de masses d'air à travers la tropopause des moyennes latitudes.

Les distributions en taille d'aérosols sont communément représentées par des lois lognormales, représentant au mieux la concentration d'une population dans un espace 3D. Cette loi à trois paramètres utilise communément la concentration totale, le rayon modal ainsi qu'une mesure de dispersion, souvent l'écart-type géométrique. Chaque mode microphysique possède une distribution en taille qui lui est propre. La réalité d'une population d'aérosols d'origine volcanique proche de l'éruption est la superposition de différents modes, que les processus microphysiques et surtout la sédimentation vont faire évoluer jusqu'à lisser l'ensemble en un seul mode. C'est ce qu'illustre la figure 1.7 présentant des sondages granulométriques réalisés dans différents contextes : en présence d'influence volcanique forte, modérée, et dans les conditions de fond.

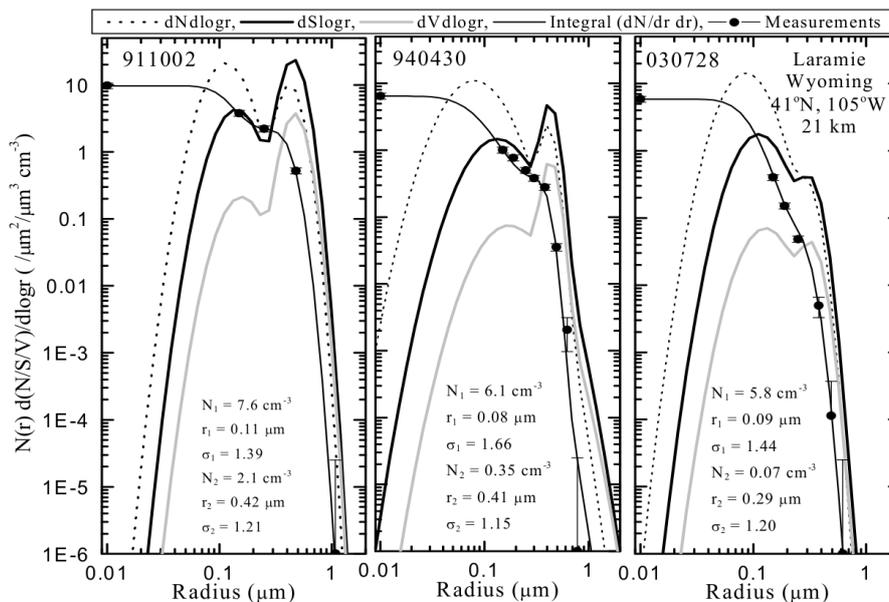


FIGURE 1.7 – Distributions d'aérosols en densité [cm^{-3}], surface [$\mu^2.\text{cm}^{-3}$], et volume [$\mu^3.\text{cm}^{-3}$] en fonction du logarithme du rayon, issues de l'interpolation de distributions lognormales bimodales sur les mesures in-situ des compteurs optiques de particules réalisées à Laramie, Wyoming entre 1991 et 2003. Les courbes pleines passant par les points de mesures représentent les distributions cumulées obtenues en intégrant les distributions en taille ajustées sur les mesures. Les mesures sont moyennées sur 1 km autour de 21 km et représentent les aérosols de la moyenne stratosphère en cas de charge volcanique forte (02/10/1991 - 911002), modérée (30/04/1994 - 940430) et régime permanent (28/07/2003 - 030728). On note la présence d'un second mode même sur la distribution correspondant aux aérosols de fond. Figure reproduite de [SPARC, 2006].

En guise de résumé de cette section présentant les aérosols stratosphériques, le schéma synthétique publié par [Kremser et al., 2016] est reproduit ci-dessous.

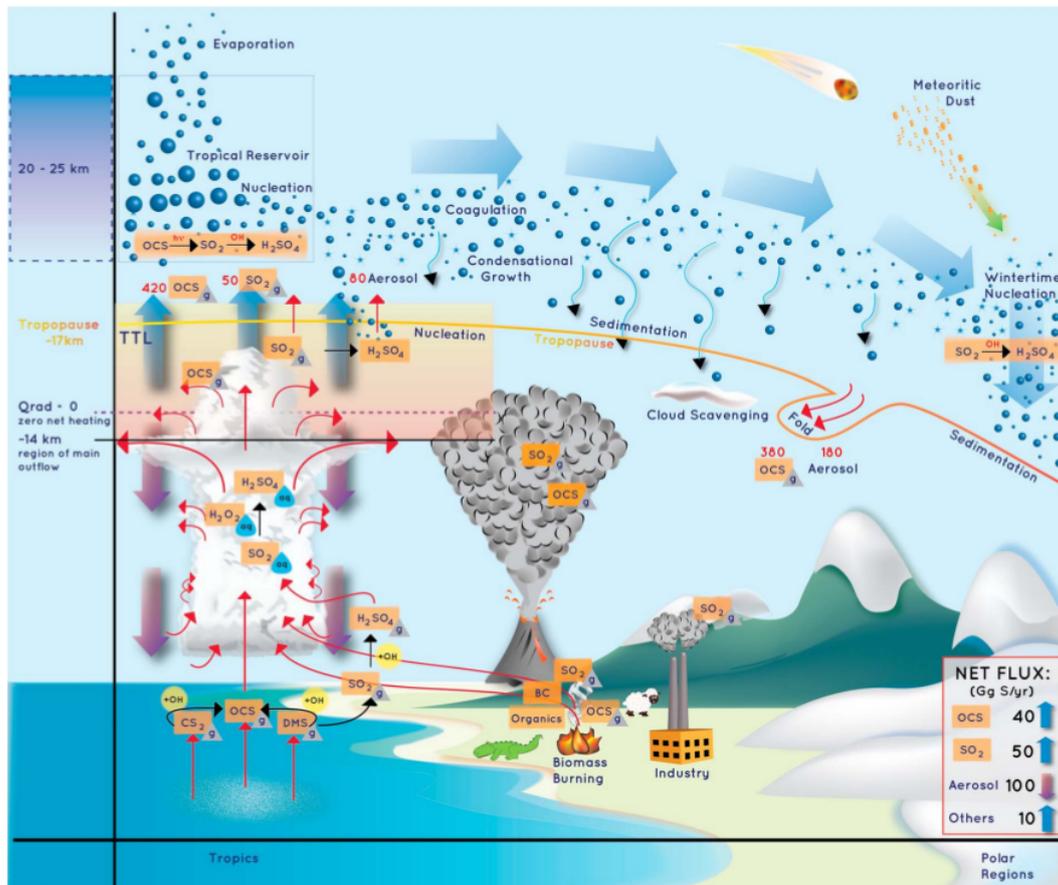


FIGURE 1.8 – Illustration schématique des processus qui gouvernent le cycle de vie et la distribution des aérosols stratosphériques. La circulation à grande échelle est représentée par les flèches bleues épaisses, les flèches rouges indiquent les autres processus de transport. Les flèches noires représentent les réactions chimiques entre composés. Les espèces chimiques sont représentées par des sphères bleues ou des triangles noirs selon leur phase, liquide ou gazeuse respectivement. La sédimentation des aérosols à travers la tropopause est indiquée par les fines flèches bleues. Comme indiqué sur la figure, OCS n'a pas nécessairement besoin de convection profonde pour être transporté à travers la TTL en raison de sa longue durée de vie troposphérique. Les chiffres rouges indiquent les flux de SO₂, OCS et d'aérosols, en Gg S/an, d'après les simulations de Sheng et al. [2015]. Les flux nets estimés de composés sulfurés à travers la tropopause sont indiqués dans l'encart gris [Sheng et al., 2015]. Les 10 Gg S/an classifiés en "Autres" sont principalement dus au sulfure de diméthyle (DMS) et au sulfure d'hydrogène (H₂S). Les autres espèces représentées sont le disulfure de carbone (CS₂), l'acide sulfurique (H₂SO₄) et le carbone suie (BC). Figure reproduite de Kremser et al. [2016]

1.2.4 Les nuages stratosphériques polaires

Comme cela a été évoqué à plusieurs reprises dans les sections précédentes, des nuages peuvent se former dans la stratosphère hivernale polaire : les nuages stratosphériques polaires, ou PSC. Ces nuages ont un rôle crucial dans les mécanismes de destruction de l'ozone stratosphérique, via les réactions hétérogènes qu'ils permettent et la dénitrification de la basse stratosphère qu'ils occasionnent comme cela a été expliqué en section 1.2.1. Cette section présente la composition de ces nuages, les différents types qui en découlent ainsi que leurs conditions de formation. La répartition spatiale et temporelle des PSC est ensuite exposée.

Observés pour la première fois à la fin du XIX^{ème} siècle avant même la mise en évidence de la stratosphère, les PSC n'ont été nommés ainsi et étudiés à proprement parler que bien plus tard. L'avènement des satellites lança véritablement l'étude de ces nuages à la fin des années 1970 et dans les années 1980. À cette période, la découverte du trou de la couche d'ozone en Antarctique stimule la recherche sur les causes de la destruction d'ozone stratosphérique et mène à la mise en évidence du rôle des PSC. L'implication forte des PSC dans les mécanismes de destruction de l'ozone a motivé et continue de motiver le besoin de connaître avec précision la composition de ces nuages et leurs conditions d'existence. Les efforts de recherche de la fin des années 1980 et des années 1990 ont permis de mettre en évidence les principales espèces composant les PSC. La multiplication des campagnes de mesures in-situ et l'amélioration des capacités instrumentales, qu'elles soient basées au sol ou spatiales, ont permis d'acquérir aujourd'hui une connaissance de plus en plus fine de ces nuages et des processus qui y sont associés.

Composition des PSC

Les PSC sont composés d'eau, d'acide nitrique et d'acide sulfurique. Selon les conditions de température et les abondances relatives de ces trois espèces, différentes particules et donc différents types de nuages sont formés. Les espèces chimiques formant les PSC sont les aérosols stratosphériques soufrés, ou aérosols de fond (SSA, Stratospheric Sulfate Aerosol - $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$), la solution dite ternaire sursaturée (STS, *Supercooled Ternary Solution* - $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-HNO}_3\text{-H}_2\text{O}$), l'acide nitrique trihydraté (NAT, *Nitric Acid Trihydrate* - $\text{HNO}_3\text{-}3\text{H}_2\text{O}$), d'autres hydrates d'acide nitrique ou sulfurique, les cristaux d'eau ou encore des mélanges des espèces susmentionnées. Des expériences en laboratoire ont montré que les hydrates comme l'acide sulfurique tétrahydraté (SAT, *Sulfuric Acid Tetrahydrate* - $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-}4\text{H}_2\text{O}$) ou l'acide nitrique dihydraté (NAD, *Nitric Acid Dihydrate* - $\text{HNO}_3\text{-}2\text{H}_2\text{O}$) peuvent exister en stratosphère, mais ils n'y ont jamais été observés. Plusieurs études ont montré que pour des raisons de cinétique thermodynamique, la formation de cristaux de SAT en stratosphère est peu probable [Luo et al., 1994], et que la nucléation de NAT sur des particules de SAT nécessite un important refroidissement non réaliste [Iraci et al., 1995, MacKenzie et al., 1995]. À ce titre ils ne sont pas pris en compte dans l'étude des PSC, même si leur potentielle présence doit être gardée à l'esprit.

Selon leur composition, les PSC ont donc été séparés en différentes classes. Initialement, il n'y avait que deux classes : les PSC de type I, composés de NAT, et ceux de type II, composés de glace d'eau [Poole et al., 1988, Poole and McCormick, 1988]. Avec la mise en évidence des gouttelettes de STS fut rajouté un type Ib pour classer ces observations, l'ancien type I devenant la [Browell et al., 1990, Toon et al., 1990].

Les PSC de type Ia sont composés de NAT. L'existence des cristaux de NAT en stratosphère à des températures jusque 7K au dessus du seuil de fusion de la glace d'eau (T_{ICE}) a été prévue dès 1988 grâce aux travaux de laboratoire de [Hanson and Mauersberger, 1988a], avant d'être confirmée par des mesures in situ par [Voigt et al., 2000]. Le rayon moyen des particules de NAT est d'environ $1\mu\text{m}$ et la densité moyenne de 10^{-2} particules par cm^{-3} .

Dans le cas des PSC de type Ia, la densité peut varier de 10^{-4} à 1 cm^{-3} . Le seuil de température de formation des NAT (T_{NAT}), souvent approximé à 195 K, dépend de l'altitude et des concentrations en eau et en acide nitrique (voir section 1.2.4).

Les PSC de type Ib, composés de gouttelettes de STS, ont été mis en évidence en 1990. Leur existence fut formellement confirmée par des travaux en laboratoire [Molina et al., 1993], des modèles thermodynamiques [Carslaw et al., 1994, Drdla et al., 1993, Tabazadeh et al., 1994] puis de nouvelles mesures in situ [Schreiner et al., 1999]. La rayon moyen des populations de gouttelettes de STS se situe entre 0,3 et $0,6 \mu\text{m}$ pour une densité comprise entre 1 et 10 cm^{-3} . Le seuil de température permettant la formation des PSC de type Ib est située environ 2 à 3 K sous T_{NAT} et environ 4 K au dessus de T_{ICE} (voir section 1.2.4).

Les PSC de type II sont composés de glace d'eau. L'existence de la glace d'eau en stratosphère est prévue par des mesures en laboratoire depuis presque un siècle [Washburn, 1924] et a été confirmée relativement tôt par des mesures satellites et in situ [Steele et al., 1983, Hofmann et al., 1989]. Le seuil de température pour la formation de ces nuages est le seuil de fusion de la glace d'eau, qui dépend lui même de l'altitude et de l'abondance d'eau. Il est situé environ à 188 K en basse stratosphère (voir section 1.2.4).

Ce découpage en trois classes a permis la mise au point des premières classifications de PSC selon des paramètres optiques. Cependant, la majorité des mesures de PSC réalisées ne rentraient pas dans les catégories attendues et ces classifications aboutissaient à un grand nombre de mesures non classées [Achtert and Tesche, 2014]. La complexité de l'étude des PSC vient du fait qu'ils sont fréquemment des mélanges, externes et internes. Des mélanges externes parce que les PSC ne sont pas composés uniquement de gouttelettes de STS ou de cristaux de NAT ou d'eau, mais plutôt d'un mélange de deux ou trois de ces espèces. Ils sont également des mélanges internes car, lors de la nucléation de cristaux de NAT ou d'eau à partir des aérosols de fond, l'acide sulfurique ou l'acide nitrique restent au sein ou autour de la particule formée. Si on peut considérer que les mélanges internes n'ont qu'une influence marginale sur les propriétés optiques des particules formées [Tritscher et al., 2021], les mélanges externes expliquent le taux de mesures non classées par les premières classifications. Pour pallier à ce défaut des classifications, de nouvelles classes de PSC ont été proposées et de nombreux schémas de classifications ont depuis été publiés. Les classifications les plus pertinentes sont discutées et comparées au chapitre 3.

Point sur les températures d'existence

Les seuils de température permettant la formation et l'existence des particules de STS, NAT et de glace d'eau ont été mentionnés dans la section précédente. Dans cette section sont détaillées les méthodes de calcul de T_{NAT} , T_{ICE} et T_{STS} afin de mettre en évidence leur variabilité et de fournir des ordres de grandeur [Larsen, 2000].

Les processus de nucléation, de condensation et d'évaporation sont contrôlés par le rapport formé entre la pression partielle de l'espèce en phase gazeuse (P_p) et la pression de vapeur saturante de la particule concernée

(P_{sat}), appelé rapport de saturation et noté $S = \frac{P_p}{P_{\text{sat}}}$. Dans le cas des particules de PSC, P_p est la pression partielle de H_2O , HNO_3 ou H_2SO_4 et P_{sat} est la pression de vapeur saturante de H_2O ou HNO_3 pour les particules de NAT, STS ou ICE. La nucléation et la condensation se produisent lorsque le rapport de saturation S est supérieur à 1. Lorsqu'il est inférieur à 1, une particule condensée précédemment formée s'évapore.

P_{sat} est principalement fonction de la température et du rayon de la particule considérée. Dans le cas des gouttelettes de STS, P_{sat} dépend également des proportions relatives de HNO_3 et H_2SO_4 composant les gouttelettes. Pour les particules de NAT, P_{sat} dépend également de la pression partielle de la vapeur d'eau. Les formules permettant de calculer P_{sat} de HNO_3 et H_2O pour des gouttelettes de STS ont été publiées par [Luo et al. \[1995\]](#). Celle donnant P_{sat} de HNO_3 pour les particules de NAT est établie par [Hanson and Mauersberger \[1988a\]](#). Enfin, P_{sat} de H_2O pour les cristaux de glace a été calculée par [Jancso et al. \[1970\]](#) et [Tabazadeh et al. \[1997\]](#).

Si tous les autres paramètres dont la pression de vapeur saturante dépend sont fixés, P_{sat} décroît avec la température. Ainsi, pour une pression partielle donnée, la température d'existence des cristaux de glace, notée T_{ICE} est définie comme la température à partir de laquelle P_{sat} de H_2O sur la glace est inférieure à la pression partielle de la vapeur d'eau à l'altitude considérée. De la même manière, la température d'existence des NAT, notée T_{NAT} , est la température en deçà de laquelle P_{sat} de HNO_3 pour les cristaux de NAT devient inférieure à la pression partielle de HNO_3 à l'altitude considérée. Ainsi, T_{ICE} dépend de la température, de l'altitude et de la concentration de H_2O et T_{NAT} dépend de la température, de l'altitude et des concentrations de H_2O et de HNO_3 .

T_{STS} , la température d'existence des gouttelettes de STS, est plus délicate à calculer et une méthode différente est utilisée. En effet, la définition d'une gouttelette de STS est plus floue que celle d'un cristaux de NAT ou de ICE. Une gouttelette de STS est un aérosol soufré dans lequel condense de l'acide nitrique. Il n'y a pas de définition claire de la concentration seuil de HNO_3 au sein d'une telle gouttelette à partir de laquelle la particule est considérée comme STS et non plus comme aérosol de fond. T_{STS} est définie comme la température à partir de laquelle la concentration en HNO_3 dépasse la concentration en H_2SO_4 au sein d'une gouttelette. La figure [1.9](#) montre le volume des gouttelettes de STS ainsi que leur composition en pourcentage massique en fonction de la température. Sur cet exemple, T_{STS} est à environ 192 K. En deçà de cette température, les proportions relatives de HNO_3 et H_2SO_4 s'inversent rapidement, et le volume des gouttelettes augmente fortement.

La figure [1.10](#) montre les valeurs de T_{NAT} , T_{STS} et T_{ICE} en fonction de l'altitude et des concentrations de H_2O et HNO_3 . Les valeurs de référence pour la stratosphère polaire en début d'hiver sont de 5 ppm d'eau et 10 ppb d'acide nitrique. Ces concentrations évoluent ensuite au fil de l'hiver, notamment suite à la déshydratation et la dénitrification causées par les PSC. La figure [1.10](#) illustre la dépendance en altitude de ces températures d'existence : sur le domaine usuel d'occurrence des PSC, entre 15 et 25 km, ces températures varient d'environ 10 K. Par ailleurs, on remarque que T_{NAT} , T_{STS} et T_{ICE} augmentent avec la concentration en H_2O et dans une moindre mesure avec la concentration en HNO_3 pour les deux premières. Ainsi, à mesure que les concentrations en H_2O et HNO_3 diminuent au fil de l'hiver, les températures nécessaires pour former les particules de PSC diminuent.

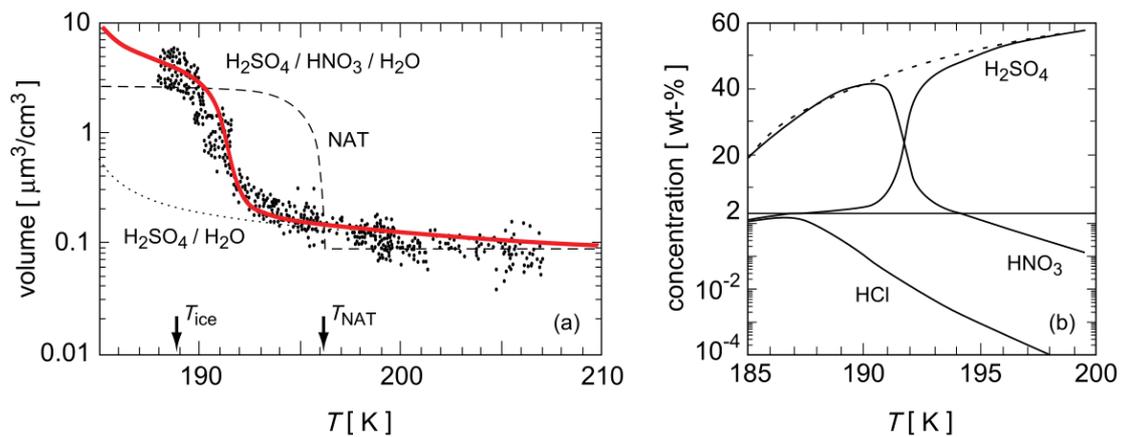


FIGURE 1.9 – (a) Volume des gouttelettes de STS en fonction de la température. Les points noirs sont des mesures réalisées en Arctique par [Dye et al. \[1992\]](#) le 24 janvier 1989 à une altitude de 19 km. Les courbes viennent de simulations thermodynamiques du volume de différentes particules stratosphériques en équilibre avec la phase gazeuse : la ligne pointillée pour les SSA, la ligne à tirets pour les NAT et la ligne rouge pour les STS. Les calculs sont basés sur des concentrations de 5 ppm de H_2O et 10 ppb de HNO_3 à 55 hPa, soit environ 19 km. (b) Concentrations, en pourcentage massique, des constituants des gouttelettes de STS en fonction de la température. Seule l'eau n'est pas représentée. La ligne pointillée correspond à H_2SO_4 au sein de gouttelettes binaires $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$. Figure reproduite de [Tritscher et al. \[2021\]](#), elle-même adaptée de [Carslaw et al. \[1994\]](#).

Les mécanismes de formation

Dans cette section sont décrits les mécanismes de formation des trois particules fondamentales des PSC : les gouttelettes de STS, les NAT et les cristaux de glace d'eau.

Gouttelettes de STS La compréhension des mécanismes de formation des particules de STS, NAT et de glace d'eau a grandement progressé au cours des dernières décennies. Si des doutes persistent sur certains chemins de formation des cristaux de NAT et d'eau, la formation des gouttelettes de STS est bien maîtrisée. Celle-ci a lieu à partir des SSA. Lorsque la température chute, la pression de la vapeur d'eau de la solution $\text{H}_2\text{O} - \text{H}_2\text{SO}_4$ chute et les gouttelettes de SSA croissent en absorbant la vapeur d'eau environnante. Lorsque la température chute davantage et atteint $T_{\text{ICE}} + 4\text{K}$, les gouttelettes peuvent absorber de petites quantités d'acide nitrique. À environ $T_{\text{ICE}} + 3\text{K}$ approximativement, la masse relative de HNO_3 au sein de la gouttelette dépasse celle de H_2SO_4 : c'est la température T_{STS} [\[Carslaw et al., 1994\]](#). L'absorption d'acide nitrique par les gouttelettes de SSA entraîne une augmentation du volume des gouttelettes, qui passent d'un rayon moyen de $0,07 \mu\text{m}$ à $0,3 \mu\text{m}$. C'est notamment cette augmentation de volume qui a permis de mettre en évidence l'existence des gouttelettes de STS, la condensation de vapeur d'eau seule n'étant pas suffisante pour expliquer cette augmentation [\[Carslaw et al., 1994\]](#). La formation des gouttelettes de STS se fait donc simplement par la condensation de la vapeur d'eau et de l'acide nitrique au sein des aérosols soufrés à mesure que la température chute. La figure [1.9](#) représente le volume des gouttelettes de STS ainsi que leur composition en pourcentage massique en fonction de la température.

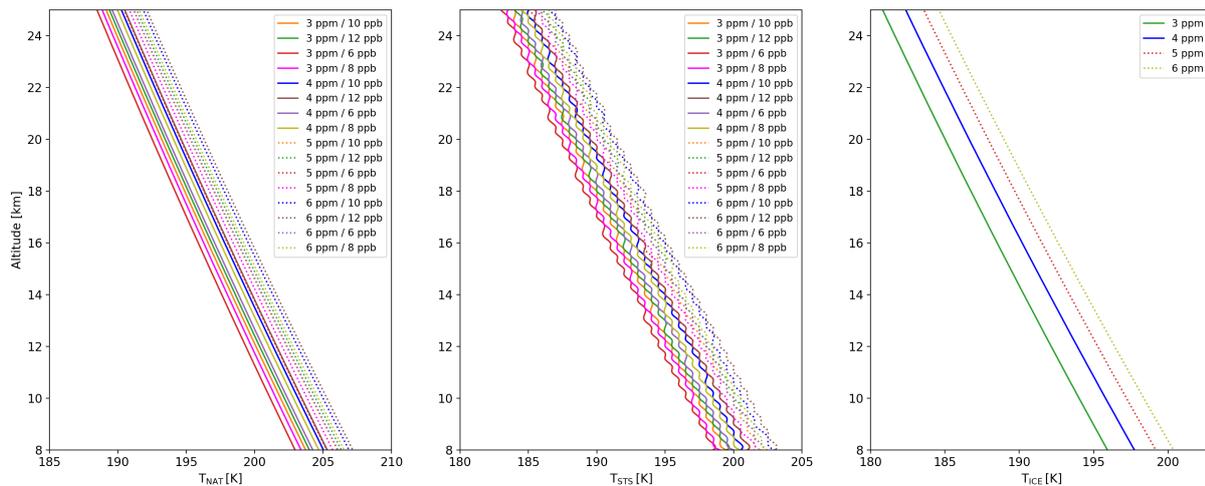


FIGURE 1.10 – Températures d'existence T_{NAT} (à gauche), T_{STS} (au milieu) et T_{ICE} (à droite) en fonction de l'altitude et des concentrations en H_2O , en ppm, et HNO_3 en ppb. T_{ICE} ne dépend que de H_2O . Des concentrations de H_2O et HNO_3 typiques de la stratosphère ont été choisies pour illustrer la variabilité des températures d'existence.

Cristaux de NAT La nucléation des cristaux de NAT est plus complexe et les différents mécanismes aboutissant à leur formation ne sont pas encore complètement maîtrisés. Postulée pendant un temps, la nucléation homogène de particules de NAT à partir de gouttelettes de STS est rendue impossible par une forte barrière énergétique de nucléation. Plutôt que de cristalliser en NAT, les gouttelettes de STS peuvent demeurer liquide jusqu'à des températures inférieures à T_{ICE} [Koop et al., 1995].

La nucléation hétérogène de NAT sur des cristaux de glace d'eau est quant à elle bien établie [Biermann et al., 1998, Luo et al., 2003]. Ce chemin de formation nécessite donc que des températures suffisamment basses aient permis la formation de glace d'eau. Les refroidissements locaux causés par exemple par des ondes orographiques permettent, en Antarctique comme en Arctique, la formation de glace et par suite, la nucléation hétérogène de NAT sur ces cristaux de glace. Les nuages ainsi formés présentent une forte densité, de 0.1 à 1 cm^3 . Comme Fueglistaler et al. [2002a,b] l'ont montré, les plus grosses particules de NAT de ces nuages peuvent sédimenter pour arriver dans des zones riches en acide nitrique, et ainsi croître encore et former des nuages présentant une faible densité de particules. Ce mécanisme de formation peut mener à de gros cristaux de NAT (jusque $10 \mu\text{m}$), qui sédimenter et constituent le principal moteur de la dénitrification abordée en section 1.2.4.

Enfin, les cristaux de NAT peuvent se former par nucléation hétérogène sur des noyaux étrangers. Ce chemin de formation a été mis en évidence plus tardivement. Les différentes observations de PSC montraient qu'il manquait un mécanisme permettant de former des cristaux de NAT sans que les températures n'aient permis la formation préalable de glace [Drdla et al., 2002]. La formation de particules de NAT à de telles températures a depuis été clairement mise en évidence par des mesures in situ menées par Ward et al. [2014]. Les noyaux étrangers servant

à la nucléation hétérogène des cristaux de NAT pourraient être d'origine météoritique. Les aérosols d'origine météoritique occupent une part non négligeable des aérosols stratosphériques comme cela a été mentionné en section 1.2.3. Cette origine des noyaux de nucléation a été proposée relativement tôt [Biermann et al., 1996, Bogdan and Kulmala, 1999, Bogdan et al., 2003] et a été confirmée plus récemment en laboratoire [James et al., 2018].

Si les cristaux de NAT sont généralement considérés comme légèrement asphériques (aspect ratio autour de 0.9), il a été montré que de gros cristaux de NAT fortement asphériques peuvent exister [Grothe et al., 2006, Bi et al., 2013, Woiwode et al., 2016]. Ce point est important en vue des propriétés optiques attendues des cristaux de NAT, et notamment de la dépolarisation qu'ils peuvent entraîner.

Cristaux de glace d'eau La formation des cristaux de glace en stratosphère peut avoir lieu selon différents mécanismes. Les cristaux peuvent tout d'abord être formés par nucléation homogène. Ce processus, bien maîtrisé, demande cependant des températures très basses, environ 3 à 4 K sous T_{ICE} [Carslaw et al., 1998, Koop et al., 1998, 2000]. De tels refroidissements ne peuvent généralement être occasionnés que par des ondes de gravité, et notamment orographiques. Ces températures ne sont pas observées fréquemment à l'échelle synoptique, surtout en Arctique. Des mécanismes manquent alors pour expliquer l'observation de champs synoptiques de PSC de cristaux de glace à des périodes où les températures ne permettent pas la nucléation homogène. Deux mécanismes sont envisagés pour cela. D'une part, la nucléation hétérogène sur des noyaux étrangers, comme évoquée pour les NAT. Cette nucléation demande des températures moins basses que la nucléation homogène, et est déjà un mécanisme reconnu en troposphère. Enfin, la nucléation hétérogène de cristaux de glace sur des NAT a été évoquée à plusieurs reprises dans la littérature mais n'est pas encore formellement validée [Barone et al., 1997, Khosrawi et al., 2011, Engel et al., 2014, Voigt et al., 2018].

Les mécanismes de formation des gouttelettes de STS et des cristaux de NAT et d'eau sont résumés en figure 1.11. Si la compréhension de ces mécanismes a progressé ces dernières décennies, certaines zones d'ombre persistent pour expliquer tout à fait les observations, et notamment autour des mécanismes de nucléation hétérogène des cristaux de NAT et d'eau.

Répartition spatiale et temporelle des PSC

La répartition des PSC, qu'elle soit spatiale ou temporelle, dépend principalement des températures stratosphériques et des abondances d'acide nitrique, d'eau et d'aérosols. Les différences majeures entre le vortex polaire des hémisphères sud et nord entraînent d'importantes disparités dans le volume et les types de PSC observés ainsi que dans la durée de la saison de PSC. Le vortex polaire nord étant moins stable, les températures permettant la formation de PSC sont atteintes moins fréquemment. Il se rompt également plus tôt dans l'hiver, réduisant d'autant la saison de PSC. Enfin, la topographie est une différence majeure entre les pôles nord et sud. Les reliefs de la surface ainsi que les zones d'interface océan – continent sont plus nombreux dans le nord, entraînant la formation

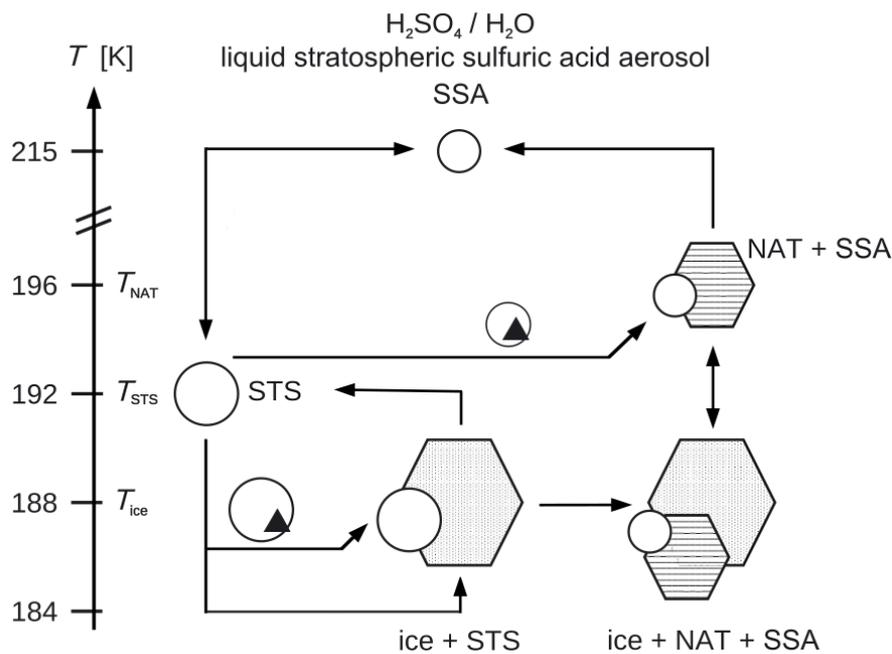


FIGURE 1.11 – Description schématique des chemins de formation des particules de PSC tels que compris actuellement. Les formes représentent la phase des particules : cercles pour les gouttelettes, hexagones pour les cristaux de NAT ou d'eau et triangles pour les noyaux de nucléation (météoritiques par exemple). Les températures indiquées pour T_{NAT} , T_{STS} et T_{ICE} sont des approximations typiques des conditions stratosphériques polaires. Figure adaptée de [Iritscher et al. \[2021\]](#), [Engel et al. \[2013\]](#) et [Hoyle et al. \[2013\]](#).

d'ondes de gravité qui propagent des refroidissements locaux et permettent la formation de PSC dans des contextes où les températures synoptiques ne l'auraient pas permise.

Le lidar spatial CALIOP (Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization) à bord du satellite CALIPSO (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations) fournit depuis 2006 de précieuses mesures des aérosols et nuages stratosphériques. De par sa nature, cet instrument permet d'avoir une vue globale sur la répartition et le volume des PSC au sein des vortex polaires. À partir de ces données, [Pitts et al. \[2018\]](#) ont présenté la moyenne du volume de PSC observé, de 2006 à 2018, ainsi que sa variabilité annuelle, en Antarctique et en Arctique. Cette figure est reproduite en figure [1.12](#). Elle permet également d'observer la durée de la saison de PSC aux deux pôles. La différence entre les deux hémisphères est flagrante : le profil combiné des maxima observés en Arctique n'atteint pas le profil combiné des minima observés en Antarctique. Au delà des valeurs de volume de PSC, la durée de la saison est plus courte en Arctique. Les PSC n'y sont observés qu'en décembre et janvier, il est en effet raisonnable de considérer que les valeurs de février observées en figure [1.12](#) sont biaisées par l'hiver 2010-11 et ne sont pas représentatives d'un hiver arctique classique. En Antarctique, les PSC sont observés de manière persistante de juin à septembre. En Arctique, il est également remarquable que la courbe des minima soit quasi nulle. Cela traduit l'instabilité du vortex polaire nord.

Les données de CALIOP permettent également de visualiser la répartition spatiale des PSC en Antarctique et

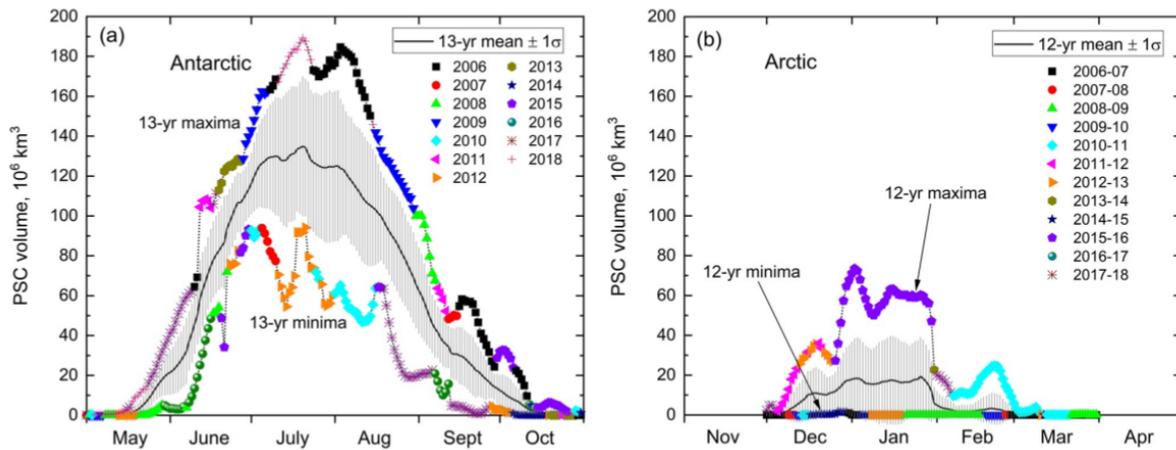


FIGURE 1.12 – Évolution temporelle de la moyenne (ligne noire) et de l'écart-type (zone grisée) du volume de PSC de 2006 à 2018 en Antarctique (a) et en Arctique (b). Les volumes sont calculés en intégrant sur l'altitude la couverture spatiale. Les valeurs minimales et maximales sont indiquées avec la couleur de l'année pour laquelle ces extrêmes ont été atteints. Figure publiée par [Pitts et al. \[2018\]](#) et mise à jour par [Tritscher et al. \[2021\]](#).

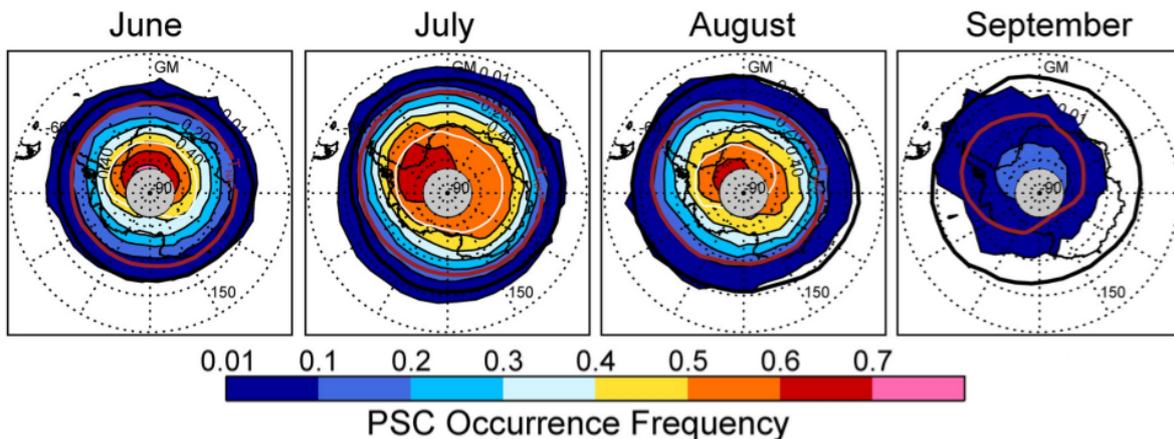


FIGURE 1.13 – Moyennes mensuelles des occurrences de PSC en Antarctique vues par CALIOP, moyennées sur la période 2006 - 2018, à $\theta = 500$ K (~ 20 km). Les lignes noire, rouge et blanche indiquent respectivement la position du vortex, la zone où $T < T_{\text{NAT}}$ et la zone où $T < T_{\text{ICE}}$. Figure publiée par [Pitts et al. \[2018\]](#) et mise à jour par [Tritscher et al. \[2021\]](#).

en Arctique, en fréquence d'occurrence de 2006 à 2018 à $\theta = 500$ K (~ 20 km) [Pitts et al. \[2018\]](#), [Tritscher et al. \[2021\]](#). Les figures publiées par [Pitts et al. \[2018\]](#) et mises à jour par [Tritscher et al. \[2021\]](#) sont reproduites en figures [1.13](#) et [1.14](#). Sur ces figures, les lignes noire, rouge et blanche représentent respectivement la limite du vortex polaire, et la limite des domaines dont la température moyenne est inférieure à T_{NAT} et T_{ICE} . La figure [1.13](#) souligne de nouveau que juillet et août sont le coeur de la saison de PSC dans l'hémisphère sud, et que les observations diminuent significativement en septembre. La répartition des PSC au dessus de l'Antarctique n'est pas symétrique, et les maxima sont situés légèrement à l'est de la péninsule antarctique. Cela s'explique par la topographie de cette zone, qui est à l'origine d'ondes de gravité et donc de la formation intensifiée de PSC.

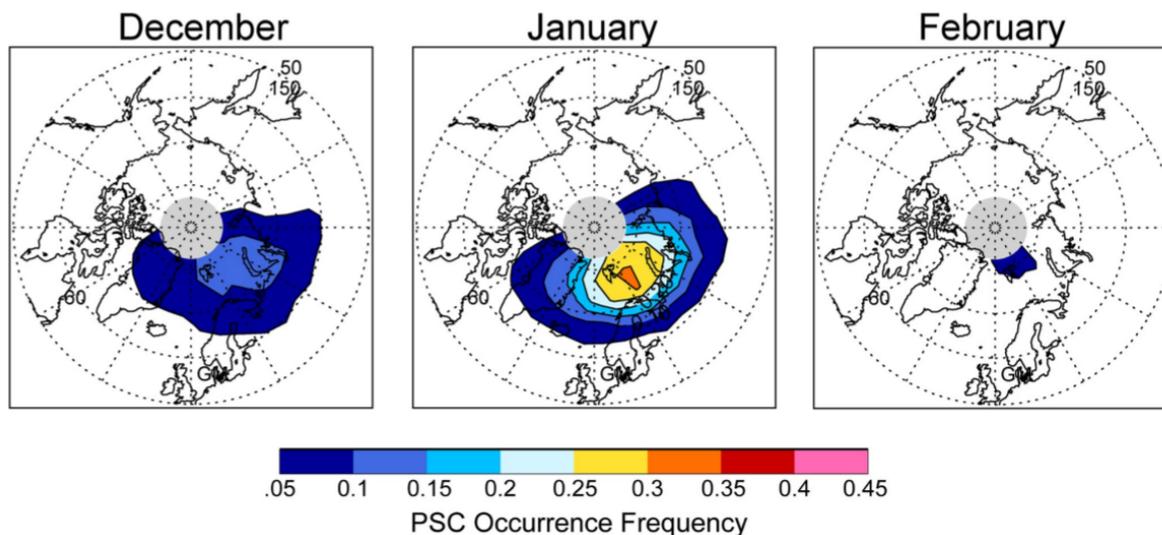


FIGURE 1.14 – Moyennes mensuelles des occurrences de PSC en Arctique vues par CALIOP, moyennées sur la période 2006 - 2018, à $\theta = 500$ K (~ 20 km). Figure publiée par [Pitts et al. \[2018\]](#) et adaptée par [Tritscher et al. \[2021\]](#).

La figure [1.14](#) montre que la distribution spatiale des PSC en Arctique présente une asymétrie plus marquée qu'au sud. Les PSC, qui ne sont observés de manière significative qu'en décembre et surtout en janvier, se concentrent entre les lignes de longitude 60° W et 120° E. Cette région correspond à la position préférentielle du vortex polaire, qui est rarement centré au dessus du pôle en Arctique [\[Zhang et al., 2016\]](#).

1.3 Les perturbations de la stratosphère

Les sections [1.1](#) et [1.2](#) ont présenté les caractéristiques majeures de la stratosphère : sa dynamique, sa composition ainsi que des processus physico-chimiques majeurs qui y prennent place. Ces sections dessinent les contours de ce qui peut être considéré comme le régime de fond de la stratosphère. Les sections suivantes se concentrent sur les perturbations, c'est-à-dire les phénomènes qui viennent modifier l'état de ce régime de fond. Les deux perturbations concernant directement cette thèse présentées dans cette section sont les éruptions volcaniques modérées et majeures ainsi que des feux de forêt d'ampleur.

Bien sûr, la notion de perturbation a quelque chose d'arbitraire. Certaines perturbations évoquées ici sont fréquentes et ont un rôle central dans l'état et la composition de la stratosphère. Il est fréquent de désigner les phénomènes introduits ici comme des perturbations en cela qu'ils viennent modifier un état stationnaire – ou régime de fond. Pour autant, cela ne signifie ni qu'ils sont des anomalies dans le système climatique global, ni qu'ils sont d'origine anthropique. Ce dernier point pourra être discuté dans le cas des feux de biomasse.

1.3.1 Le volcanisme

Le volcanisme est une des sources majeures d'aérosols stratosphériques comme cela a été mentionné en section 1.2.3. Les éruptions volcaniques sont très fréquentes à l'échelle de la planète, avec plusieurs dizaines d'évènements par an, de types et d'ampleurs très variés. Parmi ces nombreuses éruptions, celles qualifiées d'explosives sont capables d'injecter des panaches de cendres et de gaz en stratosphère. L'énergie libérée par certaines éruptions permet en effet de traverser la barrière dynamique qu'est la tropopause pour injecter des matériaux directement en stratosphère.

Selon les volcans les proportions peuvent varier, mais les éruptions explosives injectent principalement des cendres, du SO_2 , des OCS, de la vapeur d'eau et d'autres espèces gazeuses en quantités moindres, comme du CO_2 , HCl ou H_2S [Kremser et al., 2016]. Les plus grosses particules, comme les cendres, sédimentent rapidement sous l'effet de la gravitation pour retomber en troposphère, tandis que les phases gazeuses et les fines particules forment des aérosols et peuvent rester en stratosphère sur des échelles de plusieurs mois. Les espèces clés sont le SO_2 et dans une moindre mesure les OCS, qui une fois oxydées forment des aérosols d'acide sulfurique (cf section 1.2.3) et viennent alimenter la couche d'aérosols stratosphériques de fond.

Selon l'altitude à laquelle le panache pénètre en stratosphère, la latitude et la quantité de matériel injecté, les aérosols formés resteront pendant des échelles de temps variables en stratosphère, allant de plusieurs mois à plusieurs années. Ces aérosols circuleront rapidement autour du globe, et selon les contextes s'étendront jusqu'aux hautes latitudes de l'hémisphère concerné, voire sur les deux hémisphères dans le cas des éruptions les plus importantes. Peu à peu les aérosols de soufre produits diminueront en taille et en densité et se mêleront avec les aérosols dits de fond jusqu'à n'en être plus dissociables.

Les impacts des panaches d'aérosols d'origine volcanique en stratosphère sont de deux natures : radiatif et chimique. L'effet radiatif s'explique par le blocage par les aérosols d'une partie du rayonnement solaire : le bilan radiatif de la Terre est ainsi altéré sur une échelle pouvant aller jusqu'à l'année. Seule les éruptions majeures peuvent entraîner une modification significative de la température de surface par ce mécanisme. À une échelle plus locale, les aérosols ont un effet chimique en permettant des réactions chimiques hétérogènes décrites en section 1.2.1 et mènent ainsi à une augmentation de la destruction d'ozone stratosphérique. Par ailleurs, à hautes latitudes, une surcharge d'aérosols en stratosphère pourrait entraîner une augmentation des occurrences de PSC et ainsi affecter davantage les niveaux d'ozone, mais ce mécanisme n'est pour le moment pas établi.

Comme cela a été chiffré en section 1.2.3 et malgré leur irrégularité en fréquence et en intensité, les éruptions volcaniques sont la principale source d'aérosols stratosphériques, avec un apport annuel estimé en SO_2 de l'ordre de 1 Tg/an [Carn et al., 2016]. La figure 1.15 montre la masse d'aérosols stratosphériques calculée à partir des données du satellite OMPS pour les hémisphères nord et sud. La méthode pour ces calculs est détaillée en section 2.3. Cette figure montre la fréquence et l'ampleur des injections dues aux éruptions volcaniques. Certains pics sont

due à des feux de forêt et non au volcanisme comme cela sera discuté dans la prochaine section, mais cela donne néanmoins un aperçu de l'évolution temporelle de la masse d'aérosols stratosphériques.

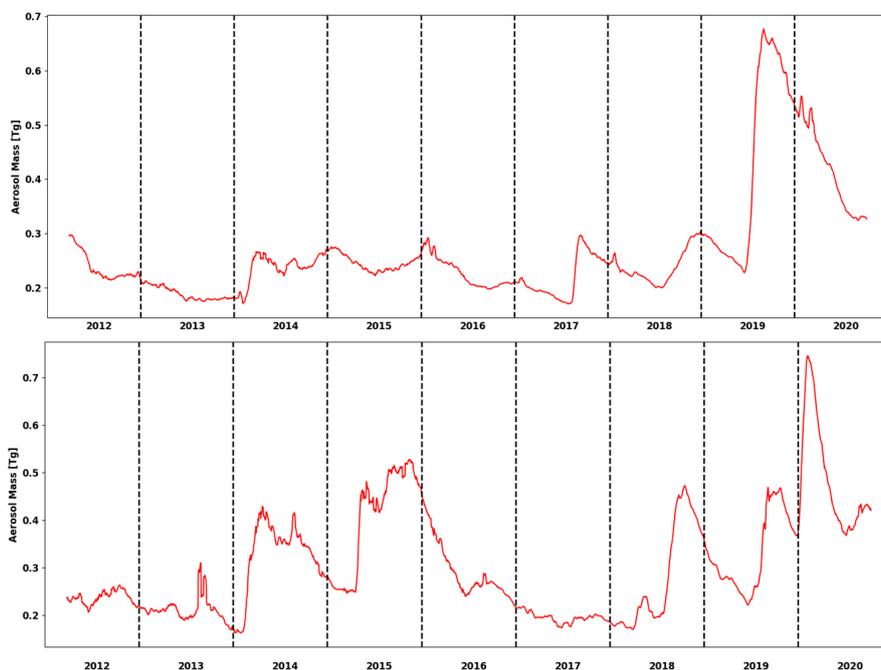


FIGURE 1.15 – Masses d'aérosols en stratosphère pour les hémisphères nord (en haut) et sud (en bas) de 2012 à 2020, calculées à partir des mesures d'extinction à 675 nm du satellite OMPS. La méthode de calcul est détaillée en section [2.3](#).

Si la charge en aérosol en stratosphère est si variable, il est donc délicat d'estimer le niveau "normal" de celle-ci, ou à défaut de définir un régime permanent à partir d'une tendance. [Sheng et al., \[2015\]](#) ont estimé cette masse entre 115 et 130 Gg de soufre. Cela montre que les injections observées lors de la dernière décennie surpassent ce niveau de fond de plusieurs facteurs. Les éruptions dont il est question ici sont qualifiées de modérées, par rapport aux événements rares et extrêmes parfois observés. Le dernier en date est l'éruption du Mont Pinatubo en 1991, qui fait aujourd'hui figure de référence et aurait injecté en stratosphère entre 3,7 et 6,7 Tg de soufre [\[Dhomse et al., 2014\]](#) et entre 7 et 11,5 Tg de soufre d'après [\[Guo et al., 2004\]](#). En 2020, [Dhomse et al. \[2020\]](#) ont réévalué cette injection entre 5 et 7 Tg de soufre à l'aide de nouvelles simulations. Selon les méthodes et les sources de données utilisées, il existe une importante variabilité dans les estimations de masses injectées. De telles injections impactent la stratosphère pendant plusieurs années, affectent fortement le niveau d'ozone et peuvent significativement diminuer la température de surface en bloquant une partie des rayonnements solaires. Selon les estimations, l'éruption du Pinatubo en 1991 a ainsi causé une diminution des températures de surface globales de 0,2 à 0,7 K sur la période 1991 - 1993 [\[Dhomse et al., 2020\]](#). Ces événements sont rares, les autres références étant les éruptions du volcan El Chichon en 1982 et du Krakatoa en 1883, mais leur impact est considérable et ils permettent des cas d'études très intéressants.

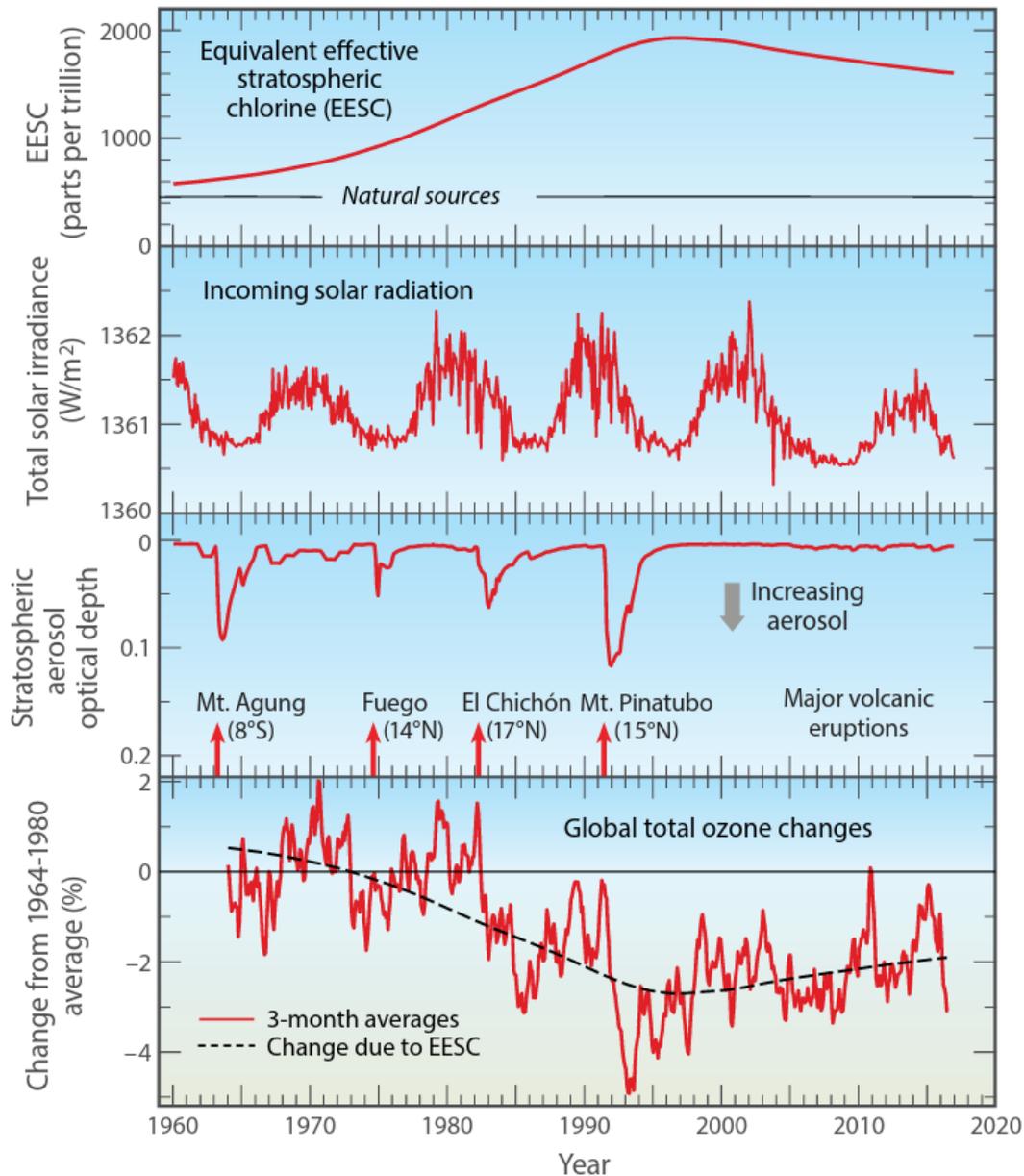


FIGURE 1.16 – Séries temporelles de la quantité d'espèces chlorées en stratosphère (a), de la radiation solaire atteignant la Terre (b), de l'épaisseur optique des aérosols stratosphériques (c) et du changement des niveaux globaux d'ozone par rapport à la période 1964 - 1980 (d). Figure reproduite de WMO 20 questions <https://cs1.noaa.gov/assessments/ozone/2018/downloads/twentyquestions.pdf>

1.3.2 Les feux de biomasse

Dans certaines régions du globe, les feux de forêts sont des événements saisonniers. C'est notamment le cas en Australie, en Amérique de Nord, en Afrique de l'Ouest ou encore en Sibérie. Ces feux ne sont pas nouveaux et sont observés depuis longtemps. Cependant, que ce soit en raison d'une ampleur croissante ou de l'augmentation des capacités instrumentales avec entre autres l'avènement des satellites, ce n'est que très récemment que la communauté scientifique a réalisé que ces événements peuvent injecter d'importantes quantités de matériaux en

stratosphère, dans des ampleurs parfois comparables à des éruptions volcaniques. Ces injections se font via la formation de nuages particuliers nommés pyrocumulonimbus (PyroCb).

La convection liée aux pyrocumululus est un phénomène connu, capable de transporter des panaches de fumée en haute troposphère. Les pyrocumululus se forment en présence d'une importante source de chaleur en surface ; qu'il s'agisse d'un feu de forêt, d'une éruption volcanique, d'un dégagement industriel ou d'une explosion importante. Cependant, ce n'est qu'au début des années 2000 que les premières observations ont mis en évidence l'injection de fumées en stratosphère [Fromm et al., 2000]. Avant cela, il était considéré que seules les éruptions volcaniques avaient suffisamment d'énergie pour traverser la barrière dynamique qu'est la tropopause dans un court laps de temps. Quelques années plus tard, le nom pyrocumulonimbus a été adopté pour désigner ces nuages particuliers, qui sont des pyrocumululus présentant une forte extension verticale [Fromm et al., 2005]. Lors d'un feu de forêt, les panaches de fumées s'élèvent dans l'atmosphère en raison de leur forte température. Ce faisant, ils se refroidissent et s'étendent. Lorsque la température a suffisamment chuté, la vapeur d'eau disponible dans l'atmosphère condense sur les cendres et autres particules présentes dans le panache pour former un pyrocumululus. Si la vapeur d'eau est présente en quantité suffisante, ce phénomène s'amplifie et le nuage formé peut devenir un pyrocumulonimbus.

La formation de ces nuages est observée lors des feux de forêt majeurs, mais l'ampleur des feux n'est pas la seule condition la régissant. Les conditions météorologiques environnantes sont primordiales pour la formation des pyroCb. [Peterson et al., 2017] ont décrit en détail les conditions menant à leur formation à partir des nombreuses observations réalisées en Amérique du Nord. La première condition est la présence d'une source importante de chaleur liée à un épisode de feu important : cela implique des conditions à la surface combinant une température élevée, une humidité très faible et des vents soutenus, auxquels on peut ajouter la disponibilité de combustible c'est-à-dire de la biomasse à consommer. Plus haut dans la troposphère, la présence d'une source d'humidité est cruciale pour la formation de pyroCb. Les conditions qui favorisent la convection en temps normal contribuent également à la formation de pyroCb. Le schéma ci-contre, reproduit de [Peterson et al., 2017], résume les conditions météorologiques évoquées ici.

En 2017, d'importants feux au Canada (communément appelés Pacific Northwest Event - PNE) ont montré que de tels évènements pouvaient injecter des quantités d'aérosols du même ordre de grandeur que des éruptions modérées. En 2020, les feux historiques en Australie (désignés dans la littérature comme le "Black Summer" ou encore ANYSO pour "Australian New Year Super Outbreak") ont établi une nouvelle référence avec des injections records en stratosphère. Il sera question de cet évènement plus en détail au chapitre 4. Ces injections importantes, qui pourraient devenir récurrentes, appellent à se questionner sur l'impact d'une forte présence de carbone en stratosphère. En effet, les aérosols issus de la combustion de biomasse sont composés entre autres de carbone et cette espèce n'est généralement pas présente en quantité significative en stratosphère.

Par ailleurs, la récente répétition des feux de forêt majeurs pose la question des tendances et de la potentielle

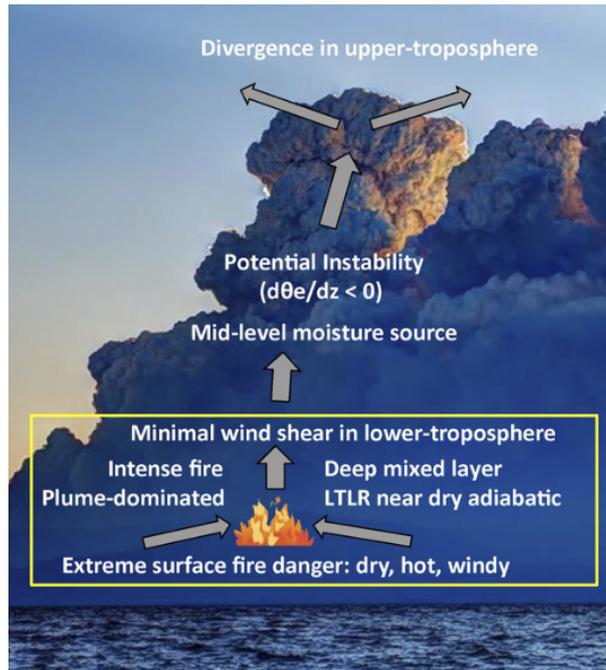


FIGURE 1.17 – Conditions météorologiques favorisant la formation de pyroCb. Figure reproduite de [Peterson et al. 2017](#)

influence anthropique sur ces phénomènes. Si les feux de forêt sont naturels et saisonniers dans certaines régions, les conséquences du changement climatique contribuent à rendre ces événements plus extrêmes et donc à augmenter la probabilité de former des pyroCb. La hausse des températures et de longues périodes de sécheresse sont par exemple des facteurs aggravants. S'il est trop tôt pour conclure sur une accélération de la fréquence de ces événements extrêmes, ils sont à surveiller et leurs impacts sur le système climatique doivent être étudiés avec attention. Les épisodes majeurs récents nous permettent d'étudier l'impact sur la composition atmosphérique et au sol de telles quantités de carbone, notamment au niveau des pôles où les déséquilibres énergétiques ou chimiques ont des conséquences souvent majeures.

1.4 Enjeux et problématique de la thèse

Le chapitre 1 a introduit les éléments et concepts clés pour appréhender au mieux les sujets abordés dans cette thèse. Dans cette section sont présentées les problématiques auxquelles elle entend au mieux répondre, du moins développer. Des sections précédentes émergent naturellement des questions autour de la réponse de la stratosphère et des processus qui y prennent place aux perturbations mentionnées.

1.4.1 Enjeux globaux

Depuis le protocole de Montréal en 1987, les niveaux d'ozone en stratosphère sont surveillés avec attention. L'interdiction de production de nombreuses substances destructrices d'ozone telles que les CFC laissait présager un retour progressif aux niveaux d'ozone d'avant 1980, mais les mesures des dernières décennies montrent une augmentation des concentrations d'ozone plus lente qu'attendue d'après les simulations initiales.

Tout d'abord, le rapport de 2018 de la World Meteorological Organization (WMO) sur la destruction d'ozone souligne que la concentration de certains polluants, comme le CFC-11, augmente de nouveau depuis 2012 (WMO, 2018). L'augmentation des émissions d'autres substances non encadrées par le protocole de Montréal, comme le CH₃Cl, contribue à maintenir le niveau de chlore dans l'atmosphère. Par ailleurs les émissions d'espèces minoritaires de CFCs, comme les CFC-13, CFC-113a, CFC-114 ou CFC-115, ont stagné voire augmenté entre 2012 et 2016 (WMO, 2018). Cela souligne que, si le protocole de Montréal est un succès historique, son application stricte ainsi que sa mise à jour régulière sont nécessaires afin que les conséquences sur les niveaux d'ozone stratosphérique soient à la hauteur des attentes.

Toutefois, le protocole de Montréal a effectivement diminué les émissions de substances destructrices d'ozone. Cette diminution s'accompagne maintenant de signes clairs d'augmentation des niveaux d'ozone (WMO, 2018). Cette tendance n'est pas toujours évidente à observer en raison de la forte variabilité naturelle de l'ozone stratosphérique. Des événements ponctuels comme des éruptions volcaniques ou des hivers particulièrement froids ou prolongés viennent également compliquer la restitution de ces tendances. À l'inverse, des hivers plus chauds que la moyenne, un vortex polaire plus faible voire sa rupture prématurée conduisent à des déplétions d'ozone réduites. Cette variabilité est plus forte pour l'hémisphère nord où le vortex polaire est plus instable qu'au sud. Les dates de retour aux niveaux d'ozone d'avant 1980, en terme de colonne totale d'ozone, sont résumées par la figure 1.18, issue du rapport WMO 2018.

Par ailleurs, la simulation des niveaux d'ozone stratosphérique dans les modèles climatiques globaux est encore aujourd'hui un défi. En effet, les processus pris en compte ne parviennent pas à prédire les niveaux d'ozone en fin d'hiver avec une précision satisfaisante, ce qui laisse penser que certains phénomènes liés à la destruction d'ozone ne sont pas encore correctement compris (Ball et al., 2020).

Si l'ozone stratosphérique est étudiée avec une telle attention depuis plusieurs décennies, c'est que son impact sur le climat est majeur, autant en troposphère qu'en stratosphère. Comme cela a été évoqué au début de ce chapitre, la couche d'ozone est à l'origine du gradient positif de température de la stratosphère. L'absorption du rayonnement solaire UV protège les organismes vivants à la surface, mais en protège également la troposphère. La diminution des niveaux d'ozone stratosphérique mène ainsi à un refroidissement de la stratosphère et à un réchauffement de la troposphère.

Ces conséquences sont à mettre en regard avec les effets observés et attendus du changement climatique.

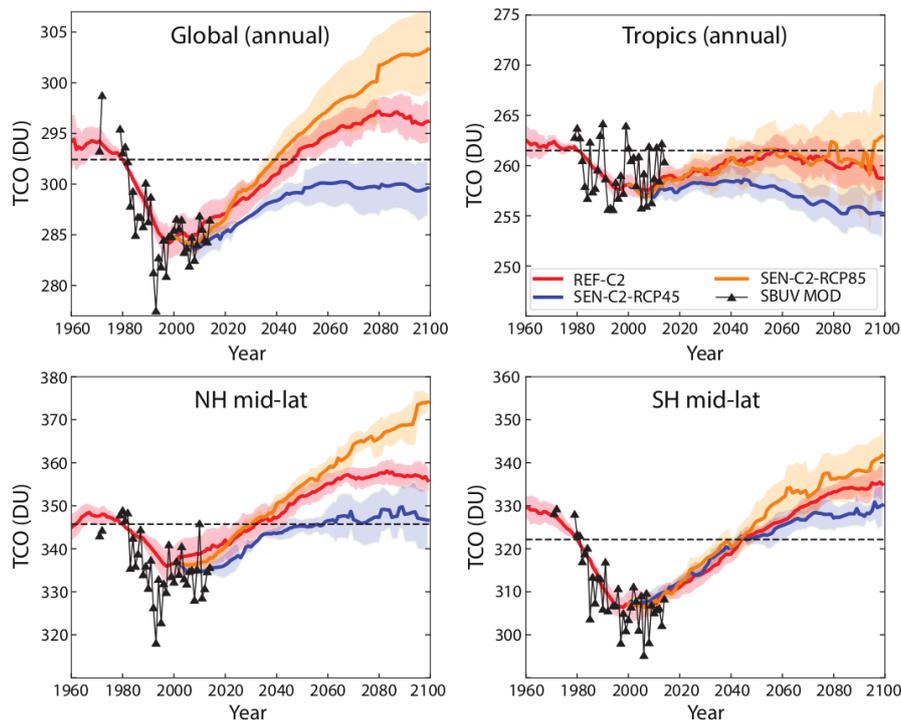


FIGURE 1.18 – Séries temporelles des moyennes annuelles de colonne totale d’ozone (TCO). TCO mesurées (courbes et triangles noirs) et simulées pour les scénarii RCP par différents modèles de chimie climat (voir [Dhomse et al. \[2018\]](#) pour les détails sur les modèles utilisés). REF-C2 correspond au RCP-6.0 (courbes rouges), SEN-C2-RCP45 au RCP-4.5 (courbes bleues), SEN-C2-RCP85 au RCP-8.5 (courbes oranges). La ligne horizontale hachurée représente la colonne totale d’ozone moyenne de 1980. Figure reproduite de [WMO \[2018\]](#), adaptée de [Dhomse et al. \[2018\]](#).

L’augmentation de la concentration des gaz à effet de serre (GES) en troposphère y entraîne une hausse des températures ainsi qu’une baisse des températures en stratosphère. De plus, comme cela a été détaillé plus tôt dans ce chapitre, les réactions hétérogènes à l’origine de la destruction d’ozone au sein du vortex polaire sont principalement fonction de la température. Ainsi, la hausse de la concentration des GES dans l’atmosphère entraîne une baisse de la température en stratosphère, qui elle même entraîne la diminution des niveaux d’ozone. À son tour, cette chute contribue à la chute des températures en stratosphère et leur hausse en troposphère. Il s’agit d’une boucle de rétroaction positive entre la hausse de concentration des GES et la chute des niveaux d’ozone stratosphérique.

Par ailleurs, la formation du vortex polaire dépend entre autres du gradient de température entre les deux basses couches de l’atmosphère. Plus ce gradient est important, plus le vortex formé sera fort et stable. Ainsi, un refroidissement de la stratosphère et un réchauffement de la troposphère mèneraient à un renforcement du vortex et donc à des pertes d’ozone accrues. Il s’agit là d’une autre boucle de rétroaction positive entre changement climatique et niveaux d’ozone stratosphérique. Les interactions entre changement climatique et ozone stratosphérique ne s’arrêtent pas là. Dans la section précédente, le lien entre les conséquences du changement climatique et la

probabilité d'occurrence des feux de biomasse susceptibles d'injecter des aérosols en stratosphère a été souligné. Ces aérosols, en stratosphère, pourraient servir de noyaux de nucléation à des PSC, ou plus directement permettre des réactions hétérogènes décrites en section [1.2.1](#). Cela viendrait renforcer les destructions locales ou saisonnières d'ozone. À l'inverse, la forte absorption des aérosols carbonés pourrait entraîner une hausse locale de la température et ainsi freiner la formation des PSC, et donc la destruction d'ozone.

Les aérosols stratosphériques jouent un rôle majeur dans l'équilibre radiatif et chimique de l'atmosphère. La charge en aérosol en stratosphère influence la température de la stratosphère, de la troposphère, et donc de la surface. Les aérosols permettent également des réactions hétérogènes mentionnées en section [1.2.1](#) directement ou via la formation de PSC, et affectent donc les niveaux d'ozone. Les aérosols, en stratosphère comme en troposphère, servent de noyaux de nucléation pour la formation de nuages. Leur abondance influence donc également la couverture nuageuse.

Face aux défis que pose le changement climatique observé depuis plusieurs décennies, certains jugent plus pertinent d'agir sur les conséquences que sur les causes et défendent ainsi ce qu'on appelle la géoingénierie. La géoingénierie regroupe l'ensemble des techniques consistant à mettre en place une intervention humaine volontaire sur le système climatique dans l'objectif d'obtenir une réponse donnée. Ainsi, ce terme rassemble une importante diversité de projets. Planter des arbres afin de capter du CO₂ localement ou de rafraîchir des zones urbaines est une forme de géoingénierie. Intervenir sur la charge en aérosols de la stratosphère en est une autre, plus intrusive et plus incertaine. Que le recours à la géoingénierie s'explique par opportunisme, par pragmatisme ou pour des raisons politiques n'est pas le sujet ici, il est un fait que la recherche dans le domaine connaît un essor important ces dernières années.

Dans le contexte de l'étude des aérosols stratosphériques, l'idée de géoingénierie la plus répandue consiste à injecter d'importantes quantités d'aérosols soufrés en stratosphère, à la manière d'une éruption volcanique, afin d'en imiter les conséquences, la plus directe étant une diminution de la température de surface. Le propos ici n'est pas de discuter la pertinence d'un tel projet, mais davantage de souligner les lacunes de notre connaissance du système climatique que ces projets mettent en évidence. Les conséquences sur le système climatique global des éruptions volcaniques majeures sont encore en partie méconnues, et si ces initiatives de géoingénierie venaient à voir le jour, il faudrait au préalable en maîtriser les retombées. Nos mesures et nos travaux mettent en évidence la finesse des équilibres gouvernant les processus stratosphériques et la portée globale des événements impactant la stratosphère.

1.4.2 Cadre de la thèse

Les pôles attirent de plus en plus l'intérêt scientifique en tant que carrefour des thématiques liées à la couche d'ozone et aux changements climatiques. C'est particulièrement le cas en stratosphère, où le transport horizontal

dominant donne une portée globale aux injections qui peuvent l'atteindre. Ces injections sont causées par des éruptions volcaniques ou par d'importants feux de biomasse, dont de récentes études soulignent l'ampleur inattendue [Peterson et al., 2017, Khaykin et al., 2020].

L'Antarctique peut être vue comme un « laboratoire de l'Arctique » pour progresser sur diverses problématiques. Citons en exemple l'étude des chemins de la microphysique de nucléation de certains composés impliqués dans la formation de PSC [Tritscher et al., 2021] ou encore la quantification précise des taux d'activation et de désactivation des espèces chlorées jouant un rôle clé dans les cycles de destruction de l'ozone (Kuttippurath et al., 2013). S'il est maintenant admis que les températures hivernales extrêmes sont une des variables critiques impactant toute la chaîne de processus jusqu'à la destruction de l'ozone, il apparaît de plus en plus important de considérer également la durée totale et la persistance de l'ensemble de la population de PSC dans un hiver comme facteur d'impact majeur [Eyring et al., 2013]. Cette intégration des propriétés des nuages polaires implique une classification efficace et adaptée au continent Antarctique.

L'essor des instruments spatiaux a marqué les dernières décennies, fournissant un accès sans précédent à des mesures atmosphériques globales. La communauté de modélisateurs se tourne de plus en plus vers les produits spatiaux de niveaux 2 et 3 pour la validation de leurs sorties. Mais en amont, la classification des particules et la restitution des propriétés associées demande une paramétrisation efficace des processus microphysiques, chimiques ou radiatifs entre espèces concernées. Hors, la validation des signatures optiques des événements les plus fins (aérosols, cirrus subvisibles et certains PSC) reste difficile en régions polaires pour des raisons liées à une logistique plus exigeante et à une microphysique stratosphérique plus complexe à ces hautes latitudes.

Le NDACC (*Network for the Detection of Atmospheric Composition Change*) est un réseau international regroupant plus de 70 stations de mesures visant à recueillir des données et du savoir scientifique dans l'objectif de suivre et comprendre les changements atmosphériques en cours. Ce réseau a aussi pour mission d'aider à la validation des observations satellites. La validation des observations lidar spatiales par des mesures sol se fait à plusieurs niveaux : par la rétrodiffusion ou les rapports de couleur par exemple, ou plus proche de l'exploitation scientifique par les classifications des nuages ou les paramètres granulométriques [Adriani et al., 2004, Winker et al., 2009]. À mesure que les capacités de caractérisation depuis l'espace augmenteront, de nouveaux produits de niveaux élevés devront également être disponibles dans les stations sol.

La France a le privilège d'avoir accès à deux stations de mesures atmosphériques sur le continent antarctique : les stations Dumont d'Urville (66,6°S – 140,0°E, DDU) et Concordia Dome C (75,1°S – 123,3°E), qui est une station franco-italienne. Ces stations sont d'une grande richesse pour un réseau comme le NDACC, puisqu'elles couvrent une zone du globe où les capacités instrumentales sont réduites. Par ailleurs, les instruments satellites ne disposent souvent que de données partielles pour ces régions à très hautes latitudes. Dans le cadre du NDACC, DDU et Concordia ont un rôle de surveillance à long terme de l'ozone et des PSC. Parmi les instruments clés de ces stations, se trouvent deux lidars stratosphériques. Maintenir de telles installations sur le long terme en Antarctique

est rare. Le lidar installé à Concordia était précédemment opéré à la station antarctique américaine McMurdo depuis 1990 avant d'être déplacé sur le site franco-italien entre 2010 et 2014. Celui situé à DDU est un lidar stratosphérique de type Rayleigh/Mie/Raman [David et al., 2012]. Installé en 1991, cet instrument a permis l'acquisition de la plus grande série temporelle antarctique à ce jour, avec de multiples jouvences, la dernière en date pendant cette thèse. Le système avait besoin d'une jouvence majeure pour rester en phase avec les questions scientifiques globales sur la stratosphère.

Les classifications d'aérosols et de PSC ont eu tendance historiquement à être basées sur des processus physico-chimiques ou microphysiques étudiés en laboratoire plutôt que sur un traitement scientifique et statistique des observations collant à une réalité de la cinétique d'évolution des particules et la résolution des instruments. En résulte souvent un jeu de définitions trop complexe pour être mis à œuvre à l'échelle globale dans les modèles récents [Aloyan et al., 2015]. De plus, en Arctique ces classifications définissent sur l'ensemble des stations entre 30 et 50% de nuages classés « mixtes » (donc regroupant différents types), bridant de fait la précision de la modélisation de ces classifications dont les propriétés chimiques sont incertaines [Blum et al., 2005, Achtert and Tesche, 2014]. Ces éléments sont étudiés et donnent lieu à de nouvelles classifications [Pitts et al., 2013]. Typiquement, les observations de PSC sont utilisées en volume pour des études traitant des deux points actuellement critiques dans la modélisation de la destruction de l'ozone, à savoir la chimie hétérogène et la dénitrification de la stratosphère [Drdla and Müller, 2012].

Autour de l'ensemble des questions scientifiques actuelles évoquées jusqu'ici, le lidar de DDU est actuellement en évolution technique depuis la campagne de cette année 2022, détaillée en chapitre 5. Les chapitres suivants s'attachent en filigrane à montrer la richesse des processus pouvant être étudiés avec un lidar à hautes latitudes, et les résultats de campagne vont guider la jouvence future sur la détection multispectrale des panaches fins. Le lidar de DDU devrait être en mesure de contribuer aux nouvelles questions scientifiques mentionnées ici, en ajoutant les aérosols carbonés à la diversité des particules observables en stratosphère polaire.

Au-delà de la question de la représentativité de la mesure sol sur des panaches ou des champs dont la dynamique suit à DDU le contour du continent, se pose la question du pouvoir discriminant des mesures, surtout sur un temps d'intégration court. Quel jeu d'observable est nécessaire et suffisant pour caractériser totalement les aérosols et nuages au-dessus de la station. Nombre de longueurs d'onde, dépolarisation, intérêt des diffusions inélastiques voire de la fluorescence, évolutions technologiques type HSRL (*High Spectral Resolution Lidar*) : la question des moyens à disposition mais aussi de la pérennité et du caractère opérationnel d'un système soumis à des contraintes logistiques et environnementales extrêmes se pose. Répondre à ces questions n'est pas l'enjeu de cette thèse mais une réflexion sur ces dernières peut facilement tirer parti des travaux présentés ici.

C'est dans le but de contribuer à ces questions que le chapitre 2 présente la technique lidar et en particulier l'instrument installé à DDU, les chapitres 3, 4 et 5 y faisant largement appel. Le chapitre 2 présente également les observations satellites de phases gazeuses et d'extinction pour les aérosols qui ont été utilisées dans les études

suivantes. Ces mesures fournissent un contexte plus large aux observations lidar locales, voire parfois le support complet du diagnostic d'un évènement, par l'estimation des masses d'eau, de carbone ou d'aérosols injectées en stratosphère par les épisodes que nous avons suivis ces trois dernières années.

Le chapitre 3 présente les mesures de PSC réalisées à DDU entre 2007 et 2020. Ces mesures sont analysées dans l'objectif d'illustrer ce que le lidar de DDU peut apporter aux questions mentionnées dans les paragraphes précédents. Cet instrument offre un point de vue local et une qualité de mesure rares qui permettent de mettre en évidence des processus fins des PSC. L'étendue de la base de données de ces mesures permet également une vision plus globale, comme l'analyse de classifications et la mise au point de tendance à long terme. La combinaison des instruments spatiaux et du lidar sol est également intéressante pour l'étude des injections stratosphériques d'aérosols, permettant par exemple d'estimer les masses injectées puis de caractériser les aérosols par leurs paramètres optiques si la circulation atmosphérique permet à un lidar sol de les mesurer. De telles études sont développées dans le chapitre 4 pour le cas d'une injection causée par des feux de forêt, et dans le chapitre 5 pour un épisode lié au volcanisme. La caractérisation précise de la nature des aérosols correspondant à différents évènements, par la restitution de leurs paramètres optiques et ou microphysiques, est primordiale, notamment en vue de la modélisation des phénomènes étudiés. La détection de panaches d'aérosols injectés permet également de tester la précision des modèles de transport.

Le point central de toute paramétrisation de processus impliquant les phases condensées reste l'obtention des paramètres granulométriques de ces particules, sur lesquels sont intégrées des efficacités de réactions chimiques et de processus radiatifs : la distribution en taille est donc centrale. La plupart des modèles sont implicites (comme Reprobus par exemple), au sens où ils prescrivent les valeurs de la distribution et ne considèrent qu'une variable d'évolution liée à la température, avec potentiellement la paramétrisation des effets cinétiques hors équilibre. Une prise en compte explicite de la distribution, c'est-à-dire la représentation en traceurs particuliers couvrant tout le spectre de taille par une discrétisation en boîtes, qui sont autant de variables modèles, n'est considérée que très récemment dans les modèles globaux (comme LMDz). Disposer d'outils permettant de remonter à la distribution en taille des particules à partir des observations est donc un investissement et une base solide pour la validation de modèles (Jumelet et al., 2008). C'est enfin une manière objective de statuer sur un résultat de classification et le potentiel de validation est très fort au-delà des variables optiques, avec des passerelles vers d'autres types d'instruments et une utilisation plus facile par la communauté scientifique.

Le suivi des panaches d'aérosols issus des feux de forêt pose de nouveaux défis instrumentaux. La plupart des instruments utilisés aujourd'hui pour étudier les particules stratosphériques ne sont pas en mesure de statuer sur l'origine d'un panache d'aérosols, entre une éruption volcanique et un feu de biomasse. Distinguer une couche d'aérosol d'un nuage stratosphérique polaire peut également être délicat selon le type de nuage. En effet, ces couches diffusantes peuvent présenter des signatures optiques similaires. Pour statuer sur leur nature, il faut alors étudier l'origine des masses d'air en utilisant des modèles de transport, exploiter des mesures de concentration

d'espèces chimiques pertinentes ou encore des données de température pouvant fournir des indices sur l'origine des aérosols. Ces méthodes ne sont pas optimales et ne permettent pas toujours de conclure avec certitude. Deux exemples de discussion sur l'origine de signatures mesurées au lidar à DDU sont présentés au chapitre 4, l'un portant sur l'origine d'une couche d'aérosols, l'autre sur la nature d'une couche détectée en hiver.

Afin de comprendre au mieux les conséquences des éruptions volcaniques sur le système climatique ou encore de traiter les nouvelles problématiques posées par le développement récent des feux de forêt, il convient donc de faire évoluer nos capacités instrumentales. Dans cet objectif, j'ai pu participer à une campagne à DDU s'inscrivant dans un programme de jouvence plus large. L'objectif principal de campagne était le remplacement de la partie émission du lidar. Le contexte sera présenté en chapitre 5. L'instrument est désormais capable d'émettre simultanément à trois longueurs d'onde, au lieu d'une précédemment. Ce changement offre de nouvelles possibilités. La réponse des couches d'aérosols aux différentes longueurs d'onde fournira peut-être des indices sur leur nature, même si cela n'a pas encore été confirmé, l'installation étant trop récente. Surtout, la mesure à trois longueurs d'onde permet de restituer la distribution en taille des particules composant les couches d'aérosols mesurées. Comme discuté précédemment, ce point est particulièrement intéressant. La méthode permettant de remonter à la distribution en taille des particules d'une couche d'aérosols à partir d'une mesure lidar ainsi que son application à un cas d'étude récent sont présentées au chapitre 5. A notre connaissance, cette application n'a jamais été réalisée à cette latitude australe, même si la technique et les moyens sont en place en Arctique [von Zahn et al., 2000, Blum et al., 2006]. Nous discutons en fin de manuscrit l'apport de cette technologie au regard de l'ensemble des questions soulevées dans les chapitres précédents et des mesures acquises pendant cette thèse.

Résumé du chapitre 1

- Les spécificités dynamiques et chimiques de la stratosphère importantes pour cette thèse ont été présentées. Une attention particulière a été portée à la chimie de l'ozone ainsi qu'aux mécanismes liés aux aérosols et nuages stratosphériques.
- Les enjeux globaux et le cadre de cette thèse ont été posés. Ce manuscrit explore les conséquences des perturbations stratosphériques sur les processus habituels de cette couche de l'atmosphère. L'évolution des températures dans le cadre du changement climatique se trouve au premier plan de ces perturbations. Le volcanisme et les feux de biomasse de grande ampleur, tous deux sources d'aérosols stratosphériques, sont également considérés comme des perturbations. Le suivi de ces panaches d'aérosols, des nuages stratosphériques polaires et donc de la couche d'ozone posent de nouveaux défis instrumentaux auxquels le lidar sol est à même de répondre.

Chapitre 2

Instruments, données et restitution des variables d'études

2.1 Le lidar stratosphérique : acquisition et traitement des mesures

2.1.1 La technologie lidar

La technologie lidar est utilisée dans de nombreux domaines, aussi variés que la défense, l'archéologie, la cartographie ou la sécurité routière, entre autres. Dans le contexte de cette thèse, la technologie lidar ne fera référence qu'à son application aux sciences atmosphériques. Au sein de ce champ d'étude, il existe également différents types d'instruments lidar qui permettent de mesurer différentes variables. Le lidar Doppler est utilisé pour mesurer la vitesse et la direction des vents. Le lidar à absorption différentielle, ou DIAL, est utilisé pour mesurer la concentration de phases gazeuses dans l'atmosphère, telles que la vapeur d'eau ou l'ozone. Parmi les technologies plus récentes, on peut mentionner le lidar HSRL (pour *High Spectral Resolution Lidar*) qui permet une mesure simultanée de l'extinction et de la rétrodiffusion, ou encore l'utilisation de la fluorescence induite par le faisceau laser pour la caractérisation de certaines particules. La technologie lidar la plus répandue dans les sciences atmosphériques est le lidar Rayleigh / Mie / Raman, ou RMR. Plusieurs applications sont possibles avec un lidar RMR : les régimes de Rayleigh et Mie permettent la mesure d'aérosols, et de la température au-delà du domaine d'occurrence des nuages. L'effet Raman peut être appliqué à la mesure d'aérosols, de phases gazeuses comme la vapeur d'eau dans le cadre du Raman dit vibrationnel, ou encore à la mesure de la température en tirant parti de l'effet Raman rotationnel. Cette section présente le principe de mesure d'un lidar RMR appliqué à l'étude des aérosols et nuages stratosphériques.

Un lidar Rayleigh / Mie / Raman est composé des sous-systèmes suivants :

- Une source laser, qui émet le signal. L'objectif est de générer un rayonnement monochromatique et polarisé dans une unique direction. Ce signal est généralement très énergétique (entre 70 et 300 mJ) afin d'obtenir un signal rétrodiffusé exploitable.
- Un télescope, qui sert à collecter le faisceau rétrodiffusé et à le diriger vers les systèmes d'acquisition.
- Des optiques servant à diriger le faisceau, à en contrôler la divergence, à le filtrer pour ne conserver que les longueurs d'onde souhaitées et à séparer les composantes du faisceau qui doivent être analysées séparément, selon la longueur d'onde et la polarisation.
- Un système d'acquisition, qui convertit la lumière incidente en électrons et permet le traitement des mesures par un ordinateur.

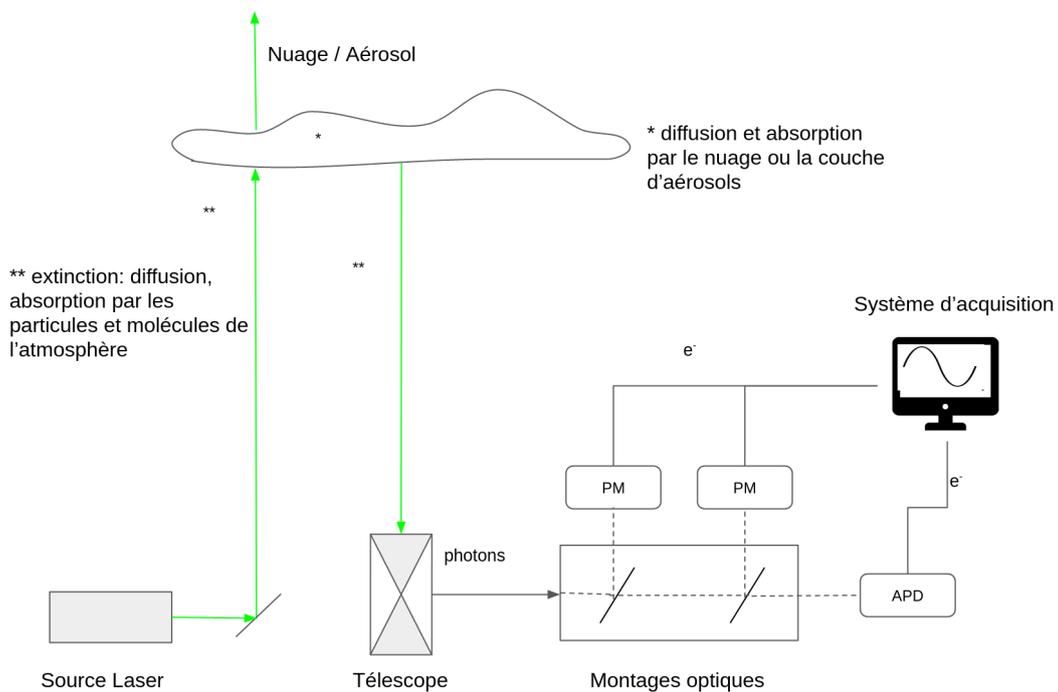


FIGURE 2.1 – Illustration du principe de la mesure lidar. PM désigne les tubes photomultiplicateurs qui permettent l'acquisition des photons incidents et leur transcription en signal électronique. APD désigne une photodiode à avalanche, un autre système de comptage de photons utilisé pour le lidar de DDU.

Le principe d'un lidar atmosphérique est illustré par le schéma de la figure 2.1 et peut être résumé comme suit. La source laser émet un signal monochromatique verticalement dans l'atmosphère, qui est ensuite diffusé par les molécules et particules présentes dans le milieu. Les photons sont diffusés par les molécules et particules de l'atmosphère selon les régimes de Rayleigh et Mie, en fonction de la taille des objets rencontrés par rapport à la longueur d'onde de la lumière incidente, et en fonction de la densité de ces objets. Puis un télescope situé à côté de la source laser détecte le signal rétrodiffusé en direction du sol. Le système complet est synchronisé de manière à pouvoir faire correspondre les instants d'acquisition du signal avec les impulsions laser, et ainsi faire correspondre à un instant une altitude.

La polarisation du signal reçu fournit des informations sur la phase des particules qui ont rétrodiffusé le faisceau laser. Le faisceau émis est polarisé linéairement. Si la lumière interagit avec des particules sphériques, sa polarisation ne change pas. En revanche, si elle est diffusée par des particules non sphériques, la polarisation du faisceau reçu sera modifiée. Ainsi, en mesurant la polarisation du signal reçu, il est possible d'obtenir des informations sur la forme des particules rencontrées par le faisceau incident, à savoir si elles sont sphériques donc liquides, ou en partie asphériques c'est-à-dire cristallines.

Une difficulté de la mesure lidar consiste à prendre en compte la diffusion multiple. Les photons du faisceau laser incident sont parfois diffusés par plusieurs molécules ou particules avant d'atteindre le télescope. Ce phénomène est plus important dans le cas de cristaux que des gouttelettes. Cela complique l'interprétation des mesures, puisque le principe du lidar tel que décrit avec la figure 2.1 se base sur un chemin direct de la source laser à la particule et de la particule au télescope. Ce processus difficile à prendre en compte est ignoré.

2.1.2 Lidar sol de Dumont d'Urville

La station antarctique française Dumont d'Urville (DDU, 66°S - 140°E), nommée d'après le premier explorateur français à avoir posé le pied sur le continent Antarctique, est en activité depuis 1956. La station est située sur une petite île, l'île des Péterles, se trouve à 20 mètres d'altitude et à quelques centaines de mètres du continent. De nombreuses activités de recherches y sont menées, parmi lesquelles l'étude des nuages et aérosols stratosphériques, notamment au moyen d'un lidar qui est présenté dans les paragraphes suivants. Le lidar est placé dans un abri situé légèrement à l'écart du cœur de la station pour éviter les potentielles pollutions lumineuses. La photo 2.2 montre cet abri et illustre la proximité entre la station et le continent, que l'on voit en arrière plan.

La station DDU a une localisation particulière au sein de la région antarctique. La figure 2.3 montre une carte de l'Antarctique avec toutes les stations scientifiques qui s'y trouvent, DDU y est marquée d'un point rouge. La position littorale de DDU lui confère tout d'abord un climat plus doux que les conditions hostiles qui règnent au sein du continent. Surtout, la station se situe fréquemment proche de la bordure du vortex polaire si ce n'est en dehors. Cela implique que les instruments qui scrutent l'atmosphère à DDU en hiver peuvent alternativement sonder des masses d'air situées à l'intérieur et à l'extérieur du vortex polaire. Afin d'illustrer ce point, la figure 2.4 montre le nombre de jours pour lesquels DDU est située dans le vortex polaire, par année.

Pour compléter la description de la station française antarctique, la figure 2.5 fournit les vitesses de vent à DDU de 2010 à 2019, mesurées par radiosondes. Cette figure montre clairement la présence saisonnière du vortex polaire. Lorsque le vortex est formé, le vent atteint des vitesses significativement supérieures à 120 km.h^{-1} entre 15 et 25 km alors qu'en été il reste inférieur à 40 km.h^{-1} aux mêmes altitudes. Les vents et les températures extrêmes expliquent que les radiosondes éclatent à plus faible altitude en hiver. Afin de donner une idée des extrêmes atteints par les vitesses de vent à DDU, entre 2010 et 2019, des vents supérieurs à 150 km.h^{-1} ont été mesurés à 277



FIGURE 2.2 – Photographie de l'abri contenant le lidar à DDU, prise lors de la campagne réalisée en 2022. Sur le toit sont situés les hublots de sortie laser et de réception pour le télescope. La photo est prise depuis DDU et donc de l'île de Péterels, en arrière plan il s'agit du continent Antarctique.

reprises, et des vents supérieurs à 200 km.h^{-1} à 40 reprises. Le vent maximal mesuré par radiosonde à DDU sur la période est de 239.5 km.h^{-1} .

Depuis avril 1989, la station est équipée d'un système lidar aérosol / nuage. Cet instrument fait partie du réseau d'instruments atmosphériques "Network for Detection of Atmospheric Composition Changes" (NDACC). Le programme impliquant le lidar est une réponse à la volonté internationale de surveiller la composition chimique et particulaire de la stratosphère suite au protocole de Montréal. Depuis, l'éventail des champs d'étude s'est élargi à mesure que l'intérêt scientifique s'est renforcé autour de l'impact global de processus locaux, des couplages aérosols/nuages, de l'étude des interactions troposphère - stratosphère ou des bilans sur certaines espèces comme la vapeur d'eau. Récemment, la prise en compte des effets du transport du carbone en stratosphère est une thématique montante. L'activité du lidar est donc centrée autour de la saison hivernale pour détecter des PSC et opérer de nuit, mais une surveillance est maintenue tout au long de l'année pour pouvoir détecter d'éventuels passages d'aérosols.

Le lidar Rayleigh / Mie / Raman opère à 532 nm en émission, suite à un doublement en fréquence de l'harmonique primaire du laser, qui est dans l'infrarouge. En réception, la rétrodiffusion liée au Raman vibrationnel du N_2 à 607 nm est également mesurée. La source laser Nd :YAG émet à une fréquence de 10 Hz avec une puissance nominale d'environ 250 mJ par impulsion au total, dont environ 150 mJ par impulsion à 532 nm . Les photons ré-

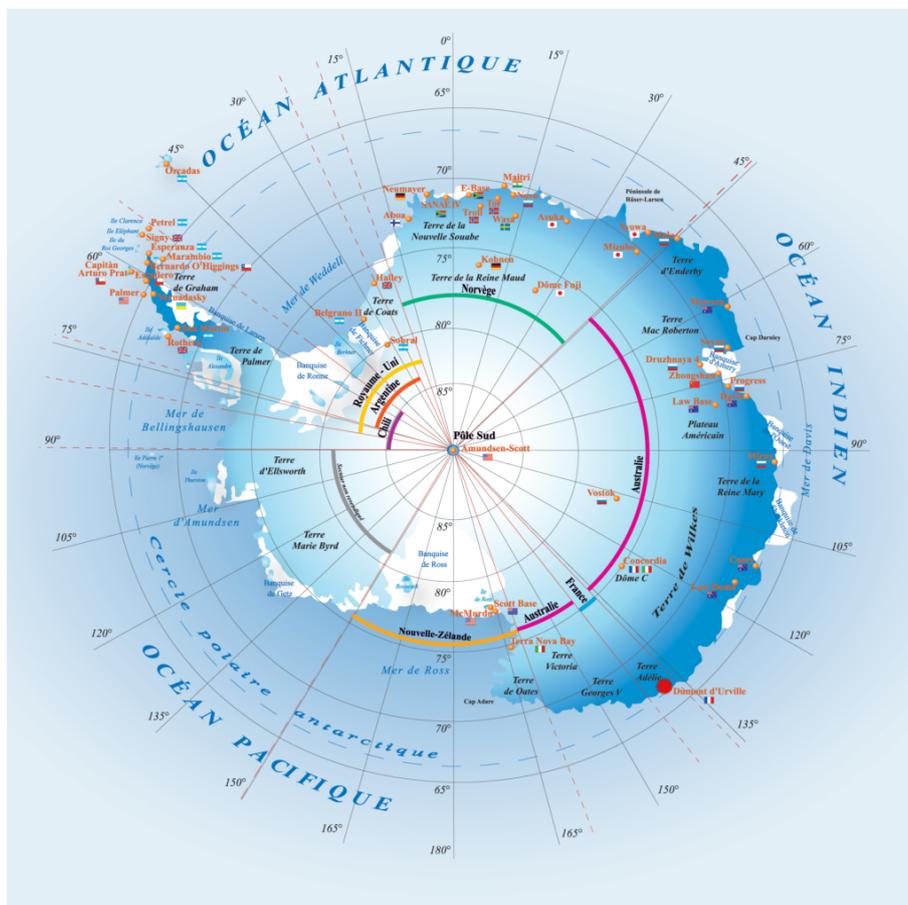


FIGURE 2.3 – Carte de l’Antarctique et des stations scientifiques qui l’occupent. Les drapeaux représentent les pays auxquels appartiennent les stations indiquées. Les arcs de couleur représentent les requêtes territoriales, actuellement gelées dans le cadre du traité de l’Antarctique. La station française DDU se situe en bas à droite de la carte, en Terre Adélie, elle est indiquée par un point rouge.

trodiffusés sont recueillis par un télescope de Newton colocalisé d’un diamètre de 80 cm. À DDU, le télescope est colocalisé avec la source laser pour accéder à la rétrodiffusion. Pour d’autres applications il peut être souhaitable de placer le télescope plus loin de la source et de mesurer la diffusion sous un angle donné. Un cube séparateur polarisant sépare ensuite le faisceau reçu à 532 nm en deux composantes aux polarisations parallèle et perpendiculaire. Cela permet d’avoir accès à la dépolarisation causée par les couches mesurées. De plus amples détails sur la configuration du lidar de DDU ainsi que des photos de l’instrument sont disponibles en section [5.2](#), où la campagne d’intervention sur le lidar à laquelle j’ai pris part début 2022 est décrite.

2.1.3 Variables pertinentes

Avant de présenter les procédures d’inversion des mesures lidar, il est important d’introduire clairement les variables et notations utilisées dans cette étude. Les coefficients de rétrodiffusion (β) et d’extinction (α), le rapport de rétrodiffusion (R) et le rapport de dépolarisation (δ) sont les paramètres principaux. Ces variables sont indiquées

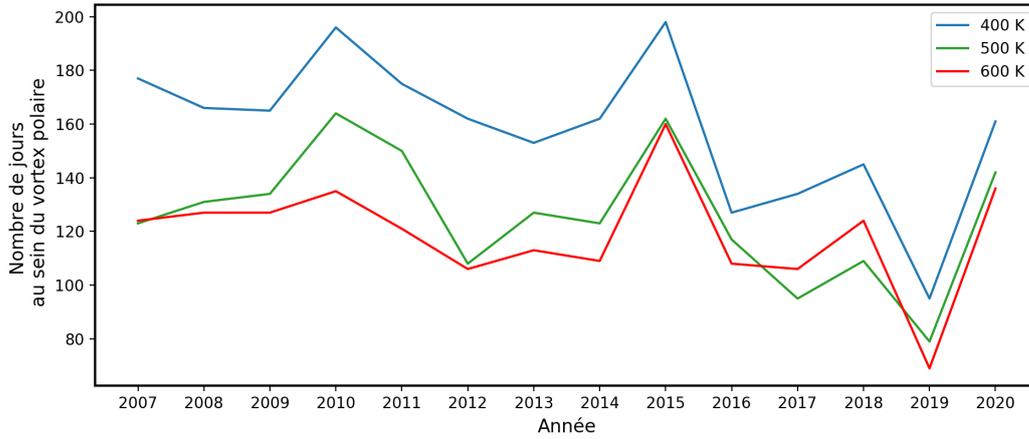


FIGURE 2.4 – Nombre de jours par an pour lesquels DDU est située à l'intérieur du vortex polaire. Les données viennent de la comparaison de la latitude équivalente de DDU à celle de la bordure du vortex, simulée à partir du modèle Mimosà.

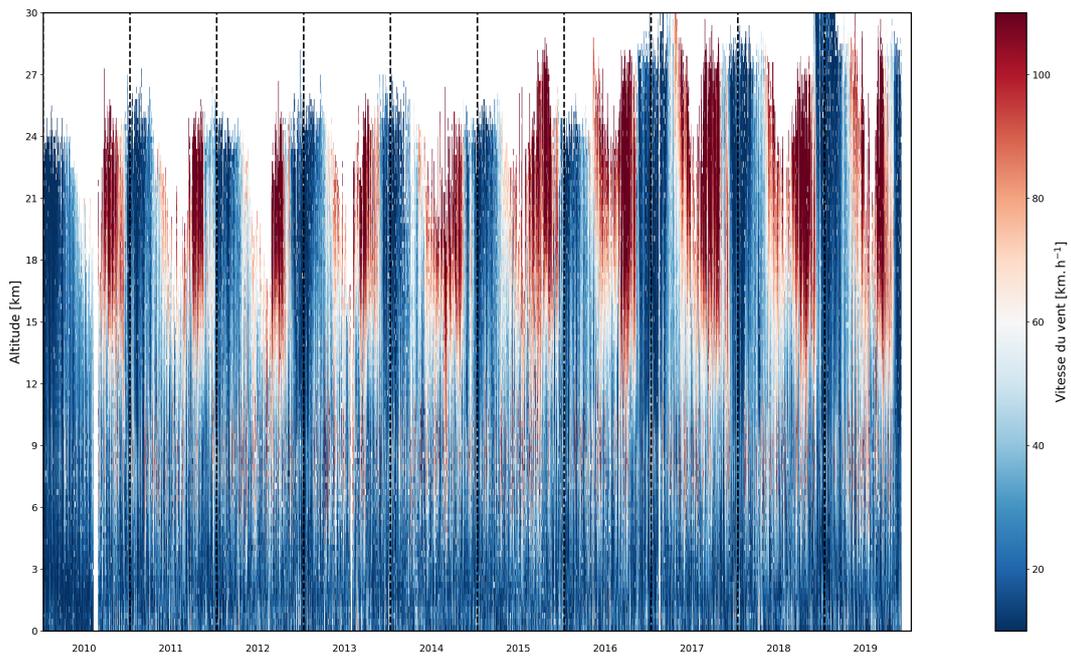


FIGURE 2.5 – Vitesse du vent, en km.h^{-1} , mesurée par radiosondes à DDU de 2010 à 2019.

des précisions nécessaires : "mol", "aer", "tot" selon qu'elles désignent les composantes moléculaires, particulières ou totales, respectivement. La longueur d'onde est également spécifiée en indice. Enfin, le lidar de DDU sépare les composantes parallèle et perpendiculaire du signal mesuré à 532 nm. Ainsi, lorsque les variables mentionnées

précédemment sont calculées pour une seule des composantes, les indices // ou \perp précisent s'il s'agit de la voie parallèle ou perpendiculaire. Dans le cas des autres longueurs d'onde, ou lorsqu'aucun de ces indices n'est présent, cela signifie qu'il s'agit de la voie complète.

Les coefficients de rétrodiffusion et d'extinction sont des propriétés optiques des particules et molécules de l'atmosphère. Dans ce chapitre nous allons présenter l'équation physique liant le coefficient de rétrodiffusion à la puissance reçue par lidar et non son calcul théorique, plus complexe car impliquant la distribution en taille des particules à toute altitude, qui est l'objet de la modélisation inverse dont il sera question au chapitre 5. L'objectif de l'inversion lidar est de réussir à déduire la valeur des coefficients d'extinction et de rétrodiffusion à partir des mesures. Les rapports de rétrodiffusion et de dépolarisation sont calculés à partir de ces coefficients.

Les rapports de diffusion total (R_λ), parallèle ($R_{\lambda, //}$) et perpendiculaire ($R_{\lambda, \perp}$) à la longueur d'onde λ sont définis de la manière suivante :

$$R_\lambda = \frac{\beta_{\lambda, aer, //} + \beta_{\lambda, aer, \perp} + \beta_{\lambda, mol, //} + \beta_{\lambda, mol, \perp}}{\beta_{\lambda, mol, //} + \beta_{\lambda, mol, \perp}} \quad (2.1)$$

$$R_{\lambda, //} = \frac{\beta_{\lambda, aer, //} + \beta_{\lambda, mol, //}}{\beta_{\lambda, mol, //}} \quad (2.2)$$

$$R_{\lambda, \perp} = \frac{\beta_{\lambda, aer, \perp} + \beta_{\lambda, mol, \perp}}{\beta_{\lambda, mol, \perp}} \quad (2.3)$$

Dans cette thèse, le rapport de dépolarisation considéré est celui dit linéaire particulaire, noté $\delta_{\lambda, aer}$. L'appellation rapport de dépolarisation est utilisée par simplification, mais désigne toujours le rapport de dépolarisation linéaire particulaire, par opposition à une autre définition qui exploite un rapport volumique dont l'expression diffère de celle utilisée ici, ou encore inclut les composantes moléculaires. La définition de $\delta_{\lambda, aer}$ est fournie par la formule suivante :

$$\delta_{\lambda, aer} = \frac{\beta_{\lambda, aer, \perp}}{\beta_{\lambda, aer, //}} = \frac{R_{\lambda, \perp} - 1}{R_{\lambda, //} - 1} \delta_{\lambda, mol} \quad (2.4)$$

où $\delta_{\lambda, mol} = \frac{\beta_{\lambda, mol, \perp}}{\beta_{\lambda, mol, //}}$ est le rapport de dépolarisation moléculaire, et dépend du lidar utilisé. Selon la largeur du filtre d'interférence utilisé sur la voie en question (532 nm dans le cas de DDU) certains lidars ne détectent que la raie centrale dite de Cabannes, alors que d'autres détectent également les raies dites Raman rotationnelles. Le lidar installé à DDU est équipé d'un filtre présentant une largeur à demie hauteur (*Full Width at Half Maximum* - FWHM) de 1 nm, et le coefficient de dépolarisation moléculaire qui en découle est $\delta_{mol} = 0.443\%$ [Behrendt and Nakamura, 2002].

Par ailleurs, dans le cas des voies permettant la mesure du rapport de dépolarisation comme la voie 532 nm du lidar de DDU, les procédures d'inversion permettent de ne mesurer que les composantes parallèle et perpendiculaire des coefficients et rapports de rétrodiffusion. À partir des équations (2.1), (2.2) et (2.3), on construit la formule

suivante pour calculer le rapport de rétrodiffusion complet :

$$R_{\lambda} = \frac{R_{\lambda, //} + R_{\lambda, \perp} * \delta_{\lambda, mol}}{1 + \delta_{\lambda, mol}} \quad (2.5)$$

Enfin, le choix des grandeurs physiques utilisées reste toujours en partie conditionné par le nombre de voies et par la conception de l'instrument. Ainsi, la communauté CALIOP (lidar spatial présenté plus loin dans ce chapitre) utilise le coefficient de rétrodiffusion total perpendiculaire ($\beta_{\lambda, tot, \perp}$) plutôt que le rapport de dépolarisation, du fait d'avoir à bord une voie totale. La formule permettant de calculer ce coefficient à partir des autres variables introduites dans cette section est fournie ci-dessous :

$$\beta_{\lambda, tot, \perp} = \beta_{\lambda, aer, \perp} + \beta_{\lambda, mol, \perp} = \beta_{\lambda, aer, \perp} + \frac{\beta_{\lambda, mol}}{1 + \frac{1}{\delta_{mol}}} \quad (2.6)$$

2.1.4 Procédures d'inversion des mesures lidar

La section précédente a introduit les variables utilisées pour les études basées sur le lidar de DDU, cette section présente maintenant les procédures d'inversion permettant de former ces variables. Ce qu'on appelle la procédure d'inversion est le traitement consistant à convertir le signal brut mesuré par le lidar (exprimé en nombre de photons par seconde par stéradian) en quantités scientifiques pertinentes et exploitables comme le coefficient de rétrodiffusion, le rapport de rétrodiffusion ou encore le rapport de dépolarisation. Dans le cadre du lidar RMR de DDU, cela nécessite à minima la connaissance des conditions atmosphériques (température et pression), le signal lidar mesuré et certaines caractéristiques de l'instrument. Cette section présente les deux méthodes principales pour réaliser cette inversion ainsi que les pré-traitements nécessaires à l'obtention de bons résultats.

Avant tout, l'équation lidar exprime la puissance du signal reçu comme suit [Ansmann et al., 1992] :

$$P_{\lambda_0}(z) = K_{\lambda_0} \frac{O(z)}{z^2} (\beta_{\lambda_0, mol} + \beta_{\lambda_0, aer}) e^{-2 \int_0^z (\alpha_{\lambda_0, mol} + \alpha_{\lambda_0, aer}) dz} \quad (2.7)$$

où :

- $P_{\lambda_0}(z)$ est la puissance reçue par le lidar à l'altitude z , en mV ;
- λ_0 la longueur d'onde émise par le lidar ;
- K_{λ_0} rassemble tous les paramètres du système qui ne dépendent pas de l'altitude ;
- z est l'altitude, en m ;
- $O(z)$ le facteur de recouvrement, il vaut 1 aux altitudes pour lesquelles le laser est intégralement dans le champ de vue du télescope ;
- $\beta_{\lambda_0, mol}$ est le coefficient de rétrodiffusion moléculaire, dit de Rayleigh, en $m^{-1} sr^{-1}$;
- $\beta_{\lambda_0, aer}$ est le coefficient de rétrodiffusion particulaire, en $m^{-1} sr^{-1}$;

- $\alpha_{\lambda_0, \text{mol}}$ est le coefficient d'extinction moléculaire, en m^{-1} ;
- $\alpha_{\lambda_0, \text{aer}}$ est le coefficient d'extinction particulaire, en m^{-1} .

Les termes β_{mol} et α_{mol} , qui représentent respectivement les coefficients de rétrodiffusion et d'extinction, sont reliés comme suit :

$$\alpha_{mol} = \frac{8\pi}{3} \beta_{mol} \quad (2.8)$$

Le coefficient de rétrodiffusion Rayleigh (β_{mol}) est calculé en utilisant la formule suivante [Nicolet et al., 1982] :

$$\beta_{mol} = 1000 \cdot \frac{P}{kT} \cdot (1 + \cos(\theta)) \frac{2.346 \cdot 10^{-33}}{\lambda^{4+x}} \quad (2.9)$$

où :

- P est la pression atmosphérique, en Pa ;
- T est la température, en K ;
- λ est la longueur d'onde du laser, en μm ;
- k est la constante de Boltzmann, en $J \cdot K^{-1}$;
- θ est l'angle de la direction dans laquelle le signal retrodiffusé est mesuré, ici $\theta = 180^\circ$;
- $x = 0.074 \cdot \lambda + \frac{0.05}{\lambda} - 0.084$ est un polynôme obtenu empiriquement, fourni par [Nicolet et al., 1982].

L'objectif de l'inversion lidar est d'isoler et calculer le coefficient de rétrodiffusion particulaire $\beta_{\lambda_0, \text{aer}}$. Cela revient à supprimer la composante moléculaire dans le signal lidar mesuré. L'équation lidar possède deux inconnues, $\beta_{\lambda_0, \text{aer}}$ et $\alpha_{\lambda_0, \text{aer}}$, tous les autres termes étant connus ou calculables. Il existe deux manières de résoudre cette équation. La première, et la plus délicate, nécessite certaines installations dont ne sont pas équipés tous les lidars, à savoir une voie dite Raman en réception. Cette méthode est appelée inversion inélastique, elle est présentée dans la section suivante. La seconde méthode demande quant à elle de faire une hypothèse sur la nature des couches diffusantes sondées par le lidar en supposant une relation connue entre $\beta_{\lambda_0, \text{aer}}$ et $\alpha_{\lambda_0, \text{aer}}$. Cette relation est le rapport lidar, généralement noté S, qui s'exprime comme le rapport du coefficient d'extinction et de rétrodiffusion : $S = \frac{\alpha_{\lambda_0, \text{aer}}}{\beta_{\lambda_0, \text{aer}}}$. C'est la méthode d'inversion dite élastique, qui sera présentée par la suite.

Inversion inélastique

Les appellations inélastique et élastique font référence au type de diffusion utilisé par la méthode d'inversion. Lorsque, comme dans le cas de la mesure lidar, un faisceau de lumière monochromatique rencontre une molécule, la lumière diffusée par la molécule est soit de la même longueur d'onde que la lumière incidente s'il n'y a pas eu d'échange d'énergie entre le photon et la molécule et on parle de diffusion Rayleigh, soit d'une longueur d'onde décalée par rapport à la lumière incidente et on parle alors de diffusion Raman. Dans ce dernier cas, il y a échange d'énergie entre le photon incident et la molécule, par exemple sous forme d'excitation vibrationnelle de la molécule.

Le décalage de longueur d'onde entre lumières diffusée et incidente est indépendant de la longueur d'onde incidente et ne dépend que de la molécule, dont il est une sorte de signature. Le décalage est soit vers le rouge, on parle de décalage Stokes, soit vers le bleu et on parle alors de décalage anti-Stokes. Ce phénomène s'appelle la diffusion Raman, du nom du physicien indien Chandrashekhara Venkata Râman (1888 - 1970) qui l'a mis en évidence. Il est exploité dans de nombreux domaines car il permet l'identification d'espèces en mesurant la réponse d'un milieu à une stimulation électromagnétique.

Dans le cas de la technologie lidar, l'effet Raman permet de résoudre l'équation lidar en fournissant une méthode pour calculer $\alpha_{\lambda_0, aer}$. Afin de tirer le meilleur parti de la diffusion Raman, il faut mesurer le décalage Stokes causé par les molécules d'azote. L'azote est l'espèce majoritaire dans l'atmosphère, c'est donc en se concentrant sur le décalage Raman de cette espèce que le signal mesuré sera maximal. Pour une lumière incidente de longueur d'onde 532 nm, le décalage Stokes causé par l'azote produit un signal à 607 nm. Si l'on note λ_0 la longueur d'onde incidente et λ_R la longueur d'onde diffusée, l'expression du signal Raman de l'azote est donnée par [Ansmann et al. \[1992\]](#) :

$$P_{\lambda_R}(z) = K_{\lambda_R} \frac{O(z)}{z^2} N_R(z) \frac{d\sigma_{\lambda_R}(\pi)}{d\Omega} e^{-\int_0^z (\alpha_{\lambda_0, mol}(z') + \alpha_{\lambda_0, aer}(z') + \alpha_{\lambda_R, mol}(z') + \alpha_{\lambda_R, aer}(z')) dz'} \quad (2.10)$$

où :

- $P_{\lambda_R}(z)$ est la puissance reçue par le lidar à l'altitude z , en mV ;
- λ_0 la longueur d'onde émise par le lidar et λ_R est la longueur d'onde Raman ;
- $O(z)$ le facteur de recouvrement, qui vaut 1 aux altitudes utiles ;
- K_{λ_R} rassemble tous les paramètres du système qui ne dépendent pas de l'altitude ;
- $N_R(z)$ est la densité moléculaire de l'azote ;
- $\frac{d\sigma_{\lambda_R}(\pi)}{d\Omega}$ est l'efficacité de diffusion Raman dans la direction inverse (*differential Raman cross section for the backward direction* en anglais)
- $\alpha_{\lambda_0, mol}(z)$, $\alpha_{\lambda_0, aer}(z)$, $\alpha_{\lambda_R, mol}(z)$, $\alpha_{\lambda_R, aer}(z)$ sont les coefficients d'extinction moléculaires et particuliers, aux longueurs d'onde λ_0 et λ_R , en m^{-1}

Cette équation fait intervenir $\alpha_{\lambda_0, aer}(z)$, mais pas $\beta_{\lambda_0, aer}(z)$ et c'est en cela qu'elle permet de résoudre l'équation lidar sans supposer de relation entre ces deux termes. En revanche, une hypothèse raisonnable est nécessaire entre les extinctions particulières à λ_0 et λ_R . On postule que $\frac{\alpha_{\lambda_0, aer}(z)}{\alpha_{\lambda_R, aer}(z)} = \left(\frac{\lambda_R}{\lambda_0}\right)^k$. D'après [Ansmann et al. \[1992\]](#), le facteur k dépend du type et de la taille des particules considérées, par rapport à la longueur d'onde incidente. Ainsi, $k = 1$ est indiqué pour les particules et gouttelettes dont le diamètre est comparable à la longueur d'onde incidente, alors que $k = 0$ est plus adapté aux cristaux, généralement plus gros. Ainsi, on peut exprimer l'extinction particulière comme suit :

$$\alpha_{\lambda_0, aer}(z) = \frac{\frac{d}{dz} [\ln(\frac{N_R(z)}{P_{\lambda_R}(z)z^2})] - \alpha_{\lambda_0, mol}(z) - \alpha_{\lambda_R, mol}(z)}{1 + (\frac{\lambda_0}{\lambda_R})^k} \quad (2.11)$$

La connaissance de la pression et la température et la mesure du signal Raman permettent donc de calculer tous les termes dont dépend $\alpha_{\lambda_0, aer}(z)$. Puis il suffit de réinjecter l'extinction ainsi calculée dans l'équation lidar (2.7) afin d'obtenir $\beta_{\lambda_0, aer}(z)$.

Inversion élastique

L'inversion inélastique n'est pas toujours réalisable, soit parce que le lidar utilisé n'est pas équipé pour détecter le signal Raman, soit parce que le traitement de ce signal n'est pas toujours aisé. En effet, ce signal est généralement faible et sa manipulation pose parfois des problèmes de traitement de signal, il en sera question en section 2.1.4. Pour ces raisons, il peut être préférable d'employer la méthode d'inversion élastique. Celle-ci se base uniquement sur l'équation (2.7) et suppose un rapport lidar indépendant de l'altitude pour ramener le nombre d'inconnues à un. Cette méthode a été principalement mise au point par Fernald (1984) et Klett (1985).

Notons le rapport lidar $S = \frac{\alpha_{\lambda_0, aer}}{\beta_{\lambda_0, aer}}$. Pour simplifier les équations, le facteur de recouvrement $O(z)$ est considéré égal 1, ce qui est vrai aux altitudes utiles. Fernald et al. (1972), Fernald (1984) et Klett (1985) ont montré que la solution à l'équation (2.7) peut être exprimé comme suit, avec $S_m = \frac{8\pi}{3}$ est le rapport lidar moléculaire :

$$P_{\lambda_0}(z) = \frac{K_{\lambda_0}}{z^2} (\beta_{\lambda_0, mol} + \beta_{\lambda_0, aer}) T_m(z) T_{aer}(z) \quad (2.12)$$

En dérivant $T(z)$, on peut écrire :

$$\beta_{\lambda_0, mol}(z) + \beta_{\lambda_0, aer}(z) = \frac{-1}{2ST(z)} \frac{dT(z)}{dz} \quad (2.13)$$

$$\beta_{\lambda_0, mol}(z) = \frac{-1}{2S_m T_m(z)} \frac{dT_m(z)}{dz} \quad (2.14)$$

$$\beta_{\lambda_0, aer}(z) = \frac{-1}{2S_{aer} T_{aer}(z)} \frac{dT_{aer}(z)}{dz} \quad (2.15)$$

En réinjectant cette expression dans l'équation (2.12), on obtient :

$$P_{\lambda_0}(z) = \frac{-K_{\lambda_0}}{2S z^2} \frac{dT(z)}{dz} \quad (2.16)$$

Ensuite, on intègre cette expression, en sachant que $T(0) = 1$:

$$T(z) = 1 - \frac{2S}{K_{\lambda_0}} \int_0^z P_{\lambda_0}(z') z'^2 dz' \quad (2.17)$$

Enfin, on remplace $T(z)$ et $\frac{dT(z)}{dz}$ dans l'équation (2.13) :

$$\beta_{\lambda_0, mol}(z) + \beta_{\lambda_0, aer}(z) = \frac{P_{\lambda_0}(z) z^2}{K_{\lambda_0} - 2S \int_0^z P_{\lambda_0}(z') z'^2 dz'} \quad (2.18)$$

$$P_{\lambda_0}(z) = \frac{K_{\lambda_0}}{z^2} (\beta_{\lambda_0, mol} - \frac{1}{2S_{aer} T_{aer}(z)} \frac{dT_{aer}(z)}{dz}) T_m(z) T_{aer}(z) \quad (2.19)$$

ou encore

$$\frac{dT_{aer}(z)}{dz} - 2S_{aer} \beta_{\lambda_0, mol} T_{aer}(z) = - \frac{2S_{aer} P_{\lambda_0}(z) z^2}{K_{\lambda_0} T_m(z)} \quad (2.20)$$

Cette équation différentielle en $T_{aer}(z)$ a pour solution :

$$T_{aer}(z) = e^{2S_{aer} \int_0^z \beta_{\lambda_0, mol}(z') dz'} \left[1 - \frac{2S_{aer}}{K_{\lambda_0}} \int_0^z \frac{P_{\lambda_0}(z') z'^2}{T_{mol}(z')} e^{-2S_{aer} \int_0^{z'} \beta_{mol}(z'') dz''} dz' \right] \quad (2.21)$$

$$\beta_{\lambda_0, aer}(z) = \frac{P_{\lambda_0}(z) z^2 e^{-2(S-S_m) \int_0^z \beta_{\lambda_0, mol}(z') dz'}}{K_{\lambda_0} - 2S \int_0^z P_{\lambda_0}(z') z'^2 e^{2(S-S_m) \int_0^z \beta_{\lambda_0, mol}(z'') dz''} dz'} - \beta_{\lambda_0, mol}(z) \quad (2.22)$$

Enfin, afin de s'affranchir des constantes de calibration, il faut supposer connaître les coefficients de rétrodiffusion et d'extinction à une altitude de référence, que l'on appelle z_R . Généralement, on choisit z_R de telles manières que $\beta_{\lambda_0, aer}(z_R) = \alpha_{\lambda_0, aer}(z_R) = 0$. L'équation (2.22) devient alors :

$$\beta_{\lambda_0, aer}(z) = \frac{P_{\lambda_0}(z) z^2 e^{-2(S-S_m) \int_z^{z_R} \beta_{\lambda_0, mol}(z') dz'}}{\frac{P(z_R) z_R^2}{\beta_{\lambda_0, mol}(z_R) + \beta_{\lambda_0, aer}(z_R)} - 2S \int_z^{z_R} P_{\lambda_0}(z') z'^2 e^{2(S-S_m) \int_z^{z_R} \beta_{\lambda_0, mol}(z'') dz''} dz'} - \beta_{\lambda_0, mol}(z) \quad (2.23)$$

Cette formule permet donc de calculer $\beta_{\lambda_0, aer}$ aisément en supposant S et une altitude de référence z_R pour laquelle l'état de l'atmosphère est connu. La connaissance de la température et la pression est également nécessaire pour calculer les composantes moléculaires.

Les équations (2.11) et (2.23) permettent de réaliser les inversions inélastiques et élastiques. Cependant, les procédures d'inversion sont techniques et demandent des étapes de pré-traitement avant d'être implémentées. En effet, les signaux lidar ont par nature un rapport signal sur bruit (SNR) relativement faible sur une ou quelques impulsions, et le bruit peut gêner le traitement des données, notamment dans le cas de l'inversion inélastique qui

fait intervenir des dérivées et des manipulations délicates pour les signaux fortement bruités. Les sections suivantes présentent les étapes de pré-traitement nécessaires aux inversions lidar.

Sélection du temps d'intégration

Le lidar stratosphérique mesure des signaux de niveaux faibles. La rétrodiffusion opérée par les molécules et particules de l'atmosphère ne renvoie qu'une faible partie de l'énergie incidente du faisceau laser vers le télescope. Ainsi, pour obtenir des signaux exploitables, les mesures lidar sont intégrées sur des temps d'acquisition plus ou moins longs. Le choix du temps d'intégration est primordial, car son influence sur les résultats de l'inversion peut être très forte. Ce choix est un compromis entre le SNR et la représentativité des acquisitions. Plus le temps d'intégration est long, plus le SNR sera fort. Mais si la scène atmosphérique que sonde le lidar évolue significativement pendant la mesure, l'intégration moyennera les acquisitions et ce qui en résultera n'aura pas de réalité physique. Il est donc crucial que les scènes atmosphériques soient homogènes sur la durée choisie pour temps d'intégration. La figure 2.6 propose une illustration de ce compromis.

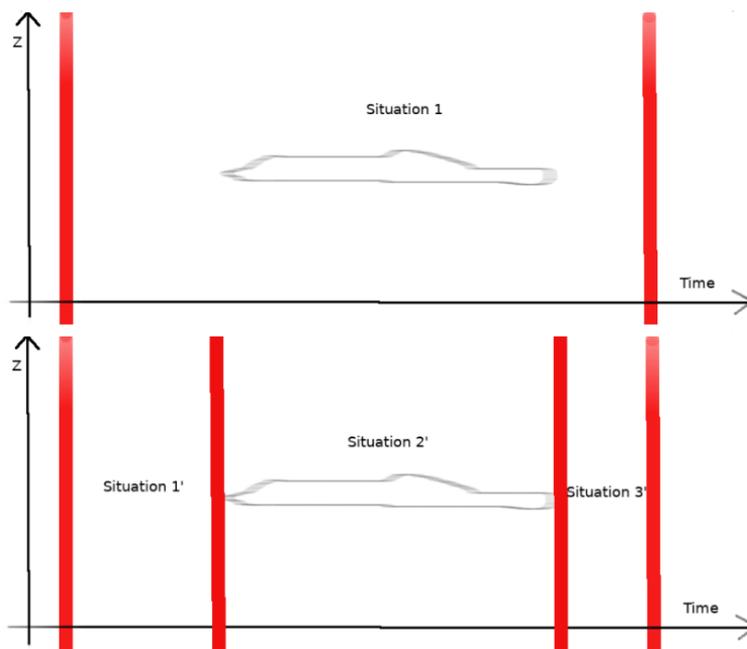


FIGURE 2.6 – Illustration de l'importance du choix du temps d'intégration par rapport à l'homogénéité des scènes atmosphériques sondées.

Le système d'acquisition du lidar de DDU produit des fichiers de mesures élémentaires d'une durée de 3 minutes. Il faut ensuite sommer ces fichiers pour former le temps d'intégration souhaité. Afin d'éviter de moyennner ensemble des mesures correspondant à des situations atmosphériques différentes, une solution de pré-traitement a été retenue pour l'inversion des mesures de DDU. Elle consiste à réaliser des inversions approximées sur des fichiers intégrés sur une durée relativement courte de 15 minutes. Cette durée a été choisie car il a été estimé qu'en

deçà de ce temps, le SNR est trop faible et ne permet pas de réaliser un traitement fiable. L'inversion approximée exploitée ici consiste à calculer un coefficient de rétrodiffusion non corrigé de l'extinction, que l'on note $\beta_{\lambda_0, aer, nce}$. En considérant $\alpha_{\lambda_0, aer} = 0$, l'équation (2.7) présente une solution simple :

$$\beta_{\lambda_0, aer, nce} = \frac{P_{\lambda_0}(z)z^2}{K_{\lambda_0}O(z)} e^{2 \int_0^z \alpha_{\lambda_0, mol} dz} - \beta_{\lambda_0, mol} \quad (2.24)$$

Ce calcul de $\beta_{\lambda_0, aer, nce}$ est bien sûr approximatif puisqu'il ne prend pas en compte l'extinction causée par les couches sondées par le lidar. Il permet toutefois de réaliser une détection de pic afin de statuer sur la présence ou non d'un nuage ou d'une couche d'aérosols. L'objectif ici n'est pas de produire des valeurs précises des propriétés optiques, mais simplement de classer les observations de 15 minutes selon qu'elles concernent un ciel clair ou une situation nuageuse. Pour ce faire, le signal est lissé et comparé à sa médiane, ce qui permet d'en faire ressortir les pics. Puis le niveau de ces pics est comparé au niveau de bruit en haut de signal afin de conclure sur la nature de ces pics : bruit ou couche diffusante. Les sessions de mesure sont ainsi classifiées, par tranche de 15 minutes, selon la nature des situations qu'elles capturent. Enfin, le temps d'intégration est sélectionné en fonction de cette classification. Dans l'exemple de la figure 2.6, cette méthode aboutit à diviser la situation en trois sous-sessions distinctes telles qu'illustrées par le schéma de la figure 2.6b. Une fois la manière de découper les sessions de mesures déterminée, les données brutes sont intégrées adéquatement et l'inversion complète peut être réalisée.

Par mesure de sécurité et afin de ne pas perdre d'information, les jeux de données sont dédoublés : un jeu de données est produit en utilisant cette méthode de pré-traitement, et un autre est produit en considérant systématiquement un temps d'intégration de 90 minutes. Par ailleurs, afin de mieux observer la dynamique et le dépendance temporelle des scènes mesurées, les données sont parfois inversées avec un temps d'intégration minimal de 15 minutes. Cela diminue bien sûr le SNR, mais permet d'avoir accès à de précieuses informations sur la dynamique des couches diffusantes et la variabilité temporelle des paramètres mesurés. Cela illustre que différents temps d'intégration servent différents objectifs : il n'y a pas de réglage idéal, tout dépend du contexte.

La figure 2.7 donne un exemple de l'importance du temps d'intégration avec les mesures réalisées à DDU le 29 juillet 2019. Cette figure présente tout d'abord la série temporelle pour laquelle les profils ont été intégrés par intervalle de 15 minutes, puis les profils intégrés sur 15 minutes en bleu et intégrés sur 90 et 105 minutes en rouge. Cet exemple est montré volontairement avec un découpage arbitraire qui divise la série de mesures en deux ensembles de durées équivalentes. Ce découpage introduit un moyennage des scènes atmosphériques observées. Ainsi, le pic de R_{532} sur ces profils est d'environ 1,35 alors que les profils intégrés sur 15 minutes montrent des pics allant jusqu'à 1,9 qui rendent comptent de la variabilité observée en 2.7a. Cette variabilité se paie au prix d'un SNR plus faible, comme on peut le voir avec les niveaux importants de bruit des courbes bleues en figure 2.7b.

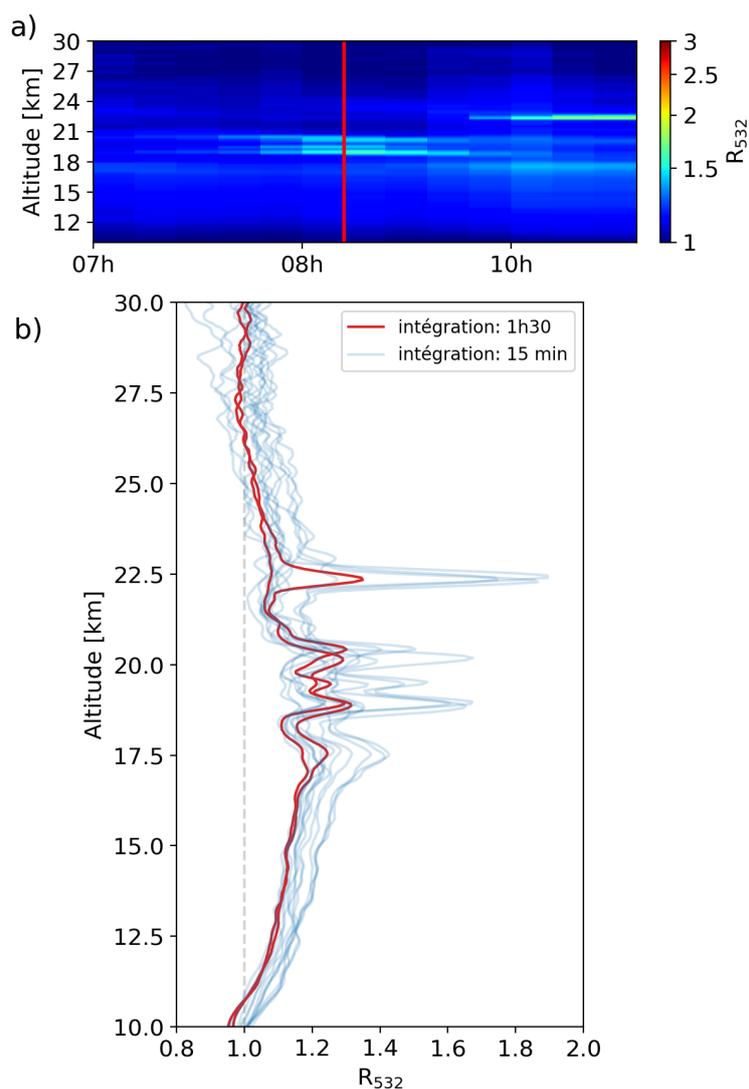


FIGURE 2.7 – Mesures lidar acquises à DDU le 29 juillet 2019. (a) Série temporelle de R_{532} , calculée avec des temps d'intégration de 15 minutes. (b) Profils de R_{532} inversés en divisant la session arbitrairement en deux (courbes rouges) et en la divisant en intervalles de 15 minutes (courbes bleues). La droite rouge en (a) indique la division en deux de la série de mesures utilisée pour (b).

Traitement du bruit de fond de ciel

Malgré le lissage permis par l'intégration des mesures, les signaux lidar présentent toujours un bruit non négligeable, que l'on appelle généralement signal de fond de ciel. Il se manifeste notamment à très haute altitude, dans des domaines où le signal mesuré devrait en théorie être nul. Ce signal de fond de ciel a une double origine : une potentielle pollution lumineuse et un bruit électronique. Il est important de supprimer ce bruit pour ne pas gêner les procédures d'inversion, d'autant que la dépendance en z^2 de l'équation lidar rend cette correction indispensable à haute altitude. La figure [2.8](#) montre deux profils correspondant à une même série de mesures, le 17 mai 2022. L'un est inversé en traitant le bruit de fond (courbe rouge), l'autre est inversé directement (ligne bleue). Lorsque le bruit

de fond de ciel n'est pas traité, le haut du signal diverge, et cela affecte également les altitudes plus basses car le haut du signal est utilisé pour la normalisation ou encore la sélection de l'altitude de référence.

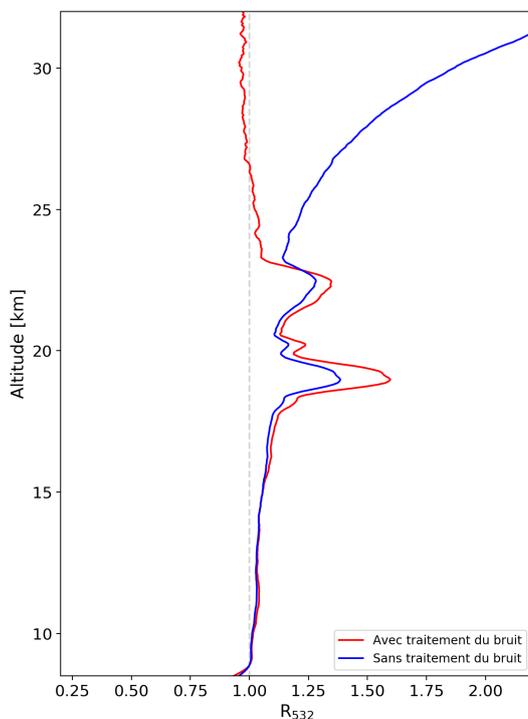


FIGURE 2.8 – Profils de R_{532} mesurés à DDU le 17/05/2022, inversés avec et sans traitement du bruit de fond de ciel (courbes rouge et bleue respectivement).

Plusieurs méthodes existent afin de supprimer ce bruit de fond, avec différents degrés de complexité prenant parfois en compte la calibration de la lumière résiduelle en fonction de la date, ou encore le profil de réponse des photomultiplicateurs. Ces méthodes peuvent donner lieu à des régressions complexes. Toutefois, les progrès technologiques sur l'électronique des composants sur la plupart des systèmes du lidar rend l'utilisation d'une moyenne tout à fait légitime la plupart du temps, dès lors que l'obscurité est bien établie. La méthode la plus directe consiste donc à calculer la moyenne du signal entre deux bornes situées en haut de profil, et de retrancher cette valeur au profil complet. Le seul choix à faire dans ce cas concerne les deux bornes entre lesquelles le niveau de bruit est calculé. Une méthode légèrement plus sophistiquée consiste à évaluer le bruit entre ces deux bornes non pas avec une moyenne mais avec une régression linéaire. La droite ainsi obtenue est ensuite retranchée au profil complet. Cette deuxième méthode donne généralement de meilleurs résultats en raison du comportement des photomultiplicateurs. Enfin, il n'existe pas de valeur idéale pour le choix des bornes délimitant l'estimation du bruit de fond de ciel. La solution retenue ici est de calculer les coefficient et rapport de rétrodiffusion approximé en utilisant différentes

bornes pour estimer le bruit de fond de ciel. Un critère est ensuite utilisé pour sélectionner les bornes optimales à utiliser pour l'inversion complète des mesures lidar.

Deux critères différents sont généralement utilisés pour juger de la qualité d'une inversion. Ces deux critères se basent sur le profil de rapport de rétrodiffusion. Le premier, que l'on nomme "distance à 1", consiste à mesurer la distance à 1 des valeurs de rétrodiffusion hors des couches diffusantes. Plus cette distance est faible, meilleure est l'inversion. En effet, comme $R_{\lambda_0} = \frac{\beta_{\lambda_0,aer} + \beta_{\lambda_0,mol}}{\beta_{\lambda_0,mol}}$, en dehors des couches d'aérosols ou de nuages, R_{λ_0} vaut en théorie 1. Les bornes retenues pour le calcul du bruit de fond de ciel seront donc celles pour lesquelles le profil de R_{λ_0} présente la plus petite distance à 1.

Le second critère pour juger d'une inversion consiste à comparer les valeurs de R_{λ_0} en dessous et haut dessus d'une couche diffusante. Si l'inversion est idéalement réalisée, la différence entre ces deux niveaux devrait tendre vers 0. Ce critère est utilisé pour juger de l'inversion complète, mais il n'est pas judicieux de l'utiliser dans ce contexte car à cette étape seul des valeurs approximées de $\beta_{\lambda_0,aer}$ et R_{λ_0} sont calculées en considérant que $\alpha_{\lambda_0,aer} = 0$. Cette hypothèse considère nulle l'extinction occasionnée par les couches diffusantes. Comparer les valeurs de R_{λ_0} en dessous et au dessus d'une couche n'est donc pas pertinent pour juger de la qualité d'une inversion approximée. Ce critère est cependant introduit ici car il est utilisé par la suite pour juger de la qualité des inversions complètes.

Implémentation des procédures d'inversion

Une fois les mesures brutes intégrées sur des durées adaptées, nettoyées du bruit de fond de ciel ainsi que désaturées si nécessaires, les procédures d'inversion complètes peuvent être réalisées. L'implémentation numérique des inversions inélastiques et élastiques est plus complexe que les équations (2.11) et (2.22) ne peuvent le laisser penser. La manipulation de signaux à faibles SNR, comme les voies Raman par exemple, la sélection automatisée de paramètres clés des procédures d'inversion tels que les altitudes de référence, les bornes utilisées pour la normalisation des signaux ou encore le rapport lidar supposé pour l'inversion élastique sont autant de défis pour le codage de ces procédures. Pour la suite de ce manuscrit, l'appellation "altitude de référence" désigne une altitude à laquelle l'atmosphère ne diffuse que dans le régime de Rayleigh, c'est-à-dire une altitude à laquelle il n'y a ni couche d'aérosols ni nuage. Cette section passe en revue les problématiques posées par ces procédures d'inversion et les solutions qui y sont apportées dans le contexte de cette thèse.

Inversion inélastique La difficulté pratique principale de l'inversion inélastique réside dans la manipulation du signal Raman, qui présente un faible SNR. La méthode de calcul numérique de l'extinction dépend principalement de la dynamique du lidar et de l'extinction de la voie 607. En terme d'ordre de grandeur, pour 1000 photons revenant sur les régimes élastiques, 1 seul photon sera issu de la diffusion Raman. La plupart des publications de la littérature se concentrent sur l'utilisation du Raman en troposphère, où l'application stricte de ces équations est beaucoup plus directe, la quantité de signal étant exponentiellement plus forte à basse altitude. Dans le cas du

lidar de DDU, l'utilisation de la voie 607, non optimisée lors de la conception originelle du système, doit se faire au cas par cas. Évidemment, la présence de multiples couches diffusantes éteindra complètement le signal rendant l'inversion inélastique inopérante souvent à une altitude supérieure à 18km. Lors de ma thèse, j'ai utilisé le coeur de l'algorithme Raman développé précédemment par Julien Jumelet. Dans le cadre de la nouvelle configuration instrumentale présentée au chapitre 5, j'ai développé un algorithme Raman qui est en cours de finalisation.

Dans l'équation (2.11), les termes λ_0 , λ_R sont connus et $\alpha_{\lambda_0, \text{mol}}(z)$, $\alpha_{\lambda_R, \text{mol}}(z)$ et $N_R(z)$ sont calculés à partir des profils de température et de pression. La difficulté réside dans le calcul du terme $\frac{d}{dz} [\ln(\frac{N_R(z)}{P_{\lambda_R}(z)z^2})]$. Pour son implémentation numérique, il est préférable d'exprimer ce terme de la manière suivante :

$$\frac{d}{dz} [\ln(\frac{N_R(z)}{P_{\lambda_R}(z)z^2})] = \frac{d}{dz} [\ln(N_R(z)) - \ln(P_{\lambda_R}(z)) - \ln(z^2)] = \frac{dP(z)}{dz} \frac{1}{P(z)} - \frac{dT(z)}{dz} \frac{1}{T(z)} - \frac{dP_{\lambda_R}(z)}{dz} \frac{1}{P_{\lambda_R}(z)} - \frac{2}{z} \quad (2.25)$$

En effet, la densité atmosphérique s'exprime en fonction de la température et la pression de la manière suivante, avec R la constante des gaz parfaits :

$$N_R(z) = \frac{P(z)}{RT(z)} \quad (2.26)$$

Par suite, la dérivée du logarithme de la densité atmosphérique s'exprime ainsi :

$$\frac{d}{dz} [\ln(N_R(z))] = \frac{d}{dz} [\ln(P(z))] - \frac{d}{dz} [\ln(T(z))] = \frac{dP(z)}{dz} \frac{1}{P(z)} - \frac{dT(z)}{dz} \frac{1}{T(z)} \quad (2.27)$$

L'équation (2.25) permet donc de calculer le coefficient d'extinction $\alpha_{\lambda_0, \text{aer}}$ en fonction de la température, la pression et le signal Raman mesuré. Cependant, cette méthode nécessite de calculer la dérivée du signal Raman et de la diviser par le signal lui-même. Ce genre d'opération est délicate avec les signaux présentant un faible SNR, et selon les cas le résultat peut présenter un bruit très fort voire diverger. Afin de contourner cet écueil, Ansmann et al. (1992) proposent une méthode de calcul numérique de l'extinction qui revient à approximer la dérivée du signal. L'équation en question est la suivante Ansmann et al. (1992) :

$$\overline{\alpha_{\lambda_0, \text{aer}}}(z, \Delta z, \Delta t) = \frac{1}{\Delta z [1 + (\frac{\lambda_0}{\lambda_R})^k]} \ln \left[\frac{\overline{P_{\lambda_R, C}}(z - 0, 5\Delta z, \Delta t)}{\overline{P_{\lambda_R, C}}(z + 0, 5\Delta z, \Delta t)} \right] \quad (2.28)$$

Où $\overline{P_{\lambda_R, C}}(z, \Delta t)$ est le signal Raman moyenné sur Δt , puis corrigé de l'altitude, de la rétrodiffusion et de l'extinction moléculaire. Autrement dit :

$$\overline{P_{\lambda_R, C}}(z, \Delta t) = \overline{P_{\lambda_R}}(z, \Delta t) z^2 e^{\int_0^z (\alpha_{\lambda_0, \text{mol}}(z') + \alpha_{\lambda_R, \text{mol}}(z'))(z') dz'} \quad (2.29)$$

Inversion élastique Dans le cas de l'inversion élastique, les signaux manipulés présentent des SNR supérieurs à la voie Raman, et des opérations telles que des dérivées n'interviennent pas dans les équations. Les problématiques de traitement de signal sont donc moins complexes que pour l'inversion inélastique. Historiquement, la sensibilité du calcul des intégrales intervenant dans l'équation (2.23) demandait des précautions particulières [Ansmann et al., 1992]. Les améliorations dans l'électronique des lidar récents permet de s'affranchir d'une partie de ces précautions. Il faut en revanche sélectionner davantage de paramètres par rapport à la méthode inélastique. Tout d'abord, comme pour la section précédente, il faut sélectionner une altitude de référence, à savoir le paramètre z_R intervenant dans l'équation (2.22). Il faut également supposer une relation entre les coefficients de rétrodiffusion et d'extinction en choisissant un rapport lidar S . Enfin, il faut choisir les bornes utilisées pour la normalisation finale du profil de rapport de rétrodiffusion.

La méthode sélectionnée consiste à balayer de nombreuses valeurs pour ces différents paramètres en réalisant l'inversion correspondante, puis à comparer les profils produits par ces différentes inversions pour choisir les paramètres optimaux. Cette méthode peut s'avérer lourde en temps de calcul, mais permet d'obtenir les meilleurs résultats et de diminuer le désavantage de l'inversion élastique qui est de supposer un rapport lidar. En calculant le profil de R_λ pour un vaste choix de valeurs de S , et en choisissant le rapport lidar qui permet la meilleure inversion, on évite de statuer sur la nature des aérosols en amont de l'inversion. Les deux critères présentés en section 2.1.4, à savoir la distance à 1 et le ΔR_λ sont utilisés pour juger de la qualité des inversions produites.

La mise en place de ces critères ainsi que la sélection d'une altitude de référence implique de connaître la localisation des potentielles couches diffusantes. Pour cela, un algorithme de détection de pics est appliqué aux profils de R_λ . Une marge de sécurité est prise par rapport aux pics identifiés afin de garantir que les altitudes utilisées pour le calcul des critères ou pour la normalisation ne correspondent pas à des couches diffusantes.

2.1.5 Estimation des incertitudes

L'estimation des incertitudes associées aux mesures lidar est à la fois cruciale et complexe. De par la nature de telles mesures, ces incertitudes peuvent être significatives, notamment en cas de mesure de jour ou de temps d'intégration réduit. Il est toutefois important de pouvoir les estimer, d'autant plus que les variables optiques déduites des mesures sont généralement comparées à des seuils pour statuer sur la nature des particules sondées.

En s'inspirant de la méthode détaillée par [Fierli et al., 2001], nous séparons les incertitudes associées au $\beta_{532,aer}$ et au R_{532} en trois types : la fluctuation statistique du bruit de photon dans le processus de détection, l'erreur liée à l'altitude de normalisation et enfin l'erreur sur la fonction de phase (i.e. le rapport lidar) supposée. Pour l'inversion inélastique cette dernière incertitude ne s'applique pas et l'expression de l'erreur peut être exprimée plus directement. Dans ce cas inélastique et à la normalisation près, on peut écrire le rapport de rétrodiffusion comme suit, avec S_{607} le signal Raman, S_{532} le signal à 532 nm et C une constante :

$$R_{532,temp} = C \frac{S_{532}}{S_{607}} \quad (2.30)$$

L'erreur associée à $R_{532,temp}$ peut donc être exprimée ainsi, à la normalisation près :

$$\frac{\Delta R_{532,temp}}{R_{532,temp}} = \frac{\Delta S_{607}}{S_{607}} + \frac{\Delta S_{532}}{S_{532}} \quad (2.31)$$

$$\Delta R_{532,temp} = \frac{1}{S_{607}} (R_{532} \Delta S_{607} + \Delta S_{532}) \quad (2.32)$$

En considérant, et cela est raisonnable, que l'erreur sur le bruit de photons et celle due à la normalisation sont indépendantes, l'erreur sur le rapport de rétrodiffusion total est donc égale à la somme de ces deux composantes. Elle s'exprime donc comme suit, où $\langle S_{607} \rangle$ et $\langle S_{532} \rangle$ sont les valeurs moyennes de S_{607} et S_{532} sur la plage de normalisation :

$$\Delta R_{532} = \frac{1}{S_{607}} (R_{532} \Delta S_{607} + \Delta S_{532}) + \frac{1}{\langle S_{607} \rangle} (\Delta \langle S_{607} \rangle + \Delta \langle S_{532} \rangle) \quad (2.33)$$

L'erreur sur l'extinction atmosphérique est ici négligée. Les erreurs sur les signaux ont été estimées avec la formule 2.33 et donnent en moyenne 6% d'incertitude entre 10 et 28 km pour un temps d'intégration de 90 minutes.

L'erreur diminue à mesure que la rétrodiffusion augmente, elle est donc plus faible dans le cas des mesures de PSC. Par ailleurs, le temps d'intégration joue sur le niveau de bruit du signal et donc sur les incertitudes : plus celui-ci est important, plus l'incertitude associée au R_{532} diminue. Enfin, parmi les facteurs impactant les erreurs associées aux mesures, on peut également citer les cycles lunaires : une pleine lune entraîne une pollution lumineuse qui affecte les niveaux de bruit des signaux mesurés.

La décennie de mesures que nous exploitons dans cette thèse présente l'avantage de pouvoir calculer une statistique solide se basant sur cet important volume de données. Pour cela, nous estimons les incertitudes associées à R_{532} en considérant d'une part le bruit du signal en calculant une variance glissante sur 5 points et d'autre part en réalisant de multiples inversions en faisant varier le profil de température, le rapport lidar supposé et l'altitude de référence. Avec ces multiples profils nous estimons l'erreur, en pourcentage, liée aux choix des paramètres d'inversions. Ces deux erreurs sont supposées indépendantes et sont sommées pour obtenir l'incertitude totale associée à R_{532} . Par cette méthode, nous estimons l'incertitude sur R_{532} à 8% : le bruit du signal et l'incertitude associée aux paramètres de l'inversion contribuant chacun pour environ 4%. Il est à noter que cela dépend bien évidemment des profils et que cette valeur 8% est une moyenne. Par exemple, dans le cas d'un PSC de plusieurs kilomètres d'épaisseur, le choix du rapport lidar a une influence plus grande que dans le cas d'une fine couche d'aérosols sur les incertitudes associées aux altitudes inférieures à la couche.

Nous estimons à 7% l'erreur sur $R_{532, //}$ entre 10 et 28 km. Le SNR étant plus faible sur le canal perpendiculaire,

l'incertitude sur l'erreur de normalisation est plus importante, surtout si celle-ci est réalisée au-dessus de 25 km, ce qui est généralement le cas dans l'étude des PSC. Ce point est cependant contrebalancé par le fait que les fortes valeurs de R_{532} associées aux PSC réduisent le SNR, et cela étant d'autant plus vrai sur le canal perpendiculaire lorsqu'il s'agit de PSC présentant une forte dépolarisation. L'erreur sur le canal perpendiculaire présente une variabilité plus forte, et est comprise entre 10 et 30%. Cependant, la formule [2.5](#) rappelle qu'en raison de la faible valeur de $\delta_{532,mol}$, l'incertitude associée à R_{532} est dominée par celle de la voie parallèle.

Enfin, d'après l'équation [2.4](#), l'incertitude sur la dépolarisation dépend des valeurs de $R_{532, //}$ et $R_{532, \perp}$ et s'exprime comme suit :

$$\Delta\delta_{532} = \frac{1}{R_{532, //} - 1} \delta_{532, mol} \Delta R_{\lambda, \perp} + \frac{R_{532, \perp} - 1}{R_{532, //} - 1} \delta_{532, mol} \Delta R_{532, //} \quad (2.34)$$

Sur la gamme des valeurs de $R_{532, //}$ et $R_{532, \perp}$ rencontrées dans nos mesures, l'incertitude sur la dépolarisation est estimée entre 10 et 15%.

2.2 Présentation des instruments spatiaux

2.2.1 CALIOP

Depuis 2006, le satellite CALIPSO (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation) sonde l'atmosphère avec le lidar CALIOP (Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization). Comme son nom l'indique, ce lidar opère à 532 nm et est doté d'une mesure de polarisation. La mission CALIPSO a pour objectif principal l'étude des nuages et aérosols atmosphériques et de leur influence sur le système climatique. Ce lidar spatial a notamment permis d'importantes avancées dans l'étude des PSC en permettant une couverture globale de ces nuages, par ailleurs relativement peu sondés par des instruments sols car situés dans la stratosphère polaire. Les mesures de CALIOP ont permis les premières études quantitatives de ces nuages. Des schémas de classification de PSC ont été publiés à partir des mesures de CALIOP ([Pitts et al., 2009, 2011, 2013, 2018](#)), il en sera question plus en détail au chapitre [3](#). Enfin, CALIOP est également très bien adapté au suivi et à l'étude de panaches d'aérosols injectés par des éruptions volcaniques ou des feux de biomasse.

CALIPSO fait partie du train de satellites "A-train", qui comprend également les satellites OMI et MLS présentés dans les sections suivantes. Ce groupement de satellites est très intéressant dans la perspective de combiner les mesures quasi coïncidentes de ces différents instruments. CALIPSO réalise entre 14 et 15 orbites par jour à une altitude de 705 km et est doté d'une couverture spatiale allant de 82°S à 82°N. Pour de plus amples informations sur CALIPSO et CALIOP, se référer au chapitre 13 de [Weitkamp \(2005\)](#) ou encore à [Winker et al. \(2009\)](#).

2.2.2 Ozone Mapping and Profiler Suite - Limb Profiler (OMPS-LP)

L'instrument Ozone Limb Profiler (LP) fait partie de l'ensemble Ozone Mapping and Profiler Suite (OMPS) à bord du satellite Suomi National Polar-orbiting (NPP) lancé en Octobre 2011. OMPS réalise de multiples mesures limb de l'atmosphère terrestre. L'instrument fournit entre autres des profils de radiance pour de multiples longueurs d'onde entre 290 et 1000 nm. L'instrument a une couverture spatiale globale et réalise environ 15 orbites par jour, mesurant simultanément trois profils le long de chaque orbite grâce à trois fentes : une centrale dans l'axe de la trajectoire orbitale et une de chaque côté, décalée de $4,25^\circ$. La résolution verticale du produit utilisé ici est de 1 km entre 10.5 et 40.5 km. Des informations complémentaires sur OMPS/LP sont fournies par [Rault and Loughman \[2013\]](#), [Jaross et al. \[2014\]](#) et [Flynn et al. \[2014\]](#). Pour cette thèse, l'instrument OMPS-LP est utilisé pour les mesures d'extinction à 510, 600, 675, 745, 869 et 997 nm qu'il fournit. Ces mesures sont utilisées soit directement, soit pour calculer des masses d'aérosols selon la méthode qui sera détaillée en section [2.3](#). La version 1.5 de l'algorithme qui permet de récupérer des profils verticaux d'extinction à partir des mesures de radiance est décrite par [Chen et al. \[2018\]](#).

2.2.3 Ozone Monitoring Instrument - OMI

L'instrument de surveillance de l'ozone (Ozone Monitoring Instrument - OMI) est le fruit d'une collaboration entre la Finlande, les Pays-Bas et les États-Unis. Lancé en juillet 2004, il fait partie des instruments du satellite Aura, tout comme MLS présenté précédemment [\[Levelt et al., 2006\]](#). L'instrument consiste en un spectrographe mesurant les radiances en haut de l'atmosphère pour les longueurs d'onde comprises entre 270 et 500 nm [\[Torres et al., 2007\]](#). Sa résolution spatiale varie de 13 km x 24 km à environ 28 km x 150 km. OMI est dédié au suivi de l'ozone, mais les concentrations d'autres espèces clés tels que NO₂, SO₂, BrO, HCHO, OCIO ainsi que des mesures d'aérosol sont aussi restituées à partir des mesures de radiance de l'instrument. OMI est ainsi adapté à l'étude des panaches de fumée et d'aérosols émis par des éruptions volcaniques ou des feux de forêt.

Le produit de niveau 3 indice aérosol UV (UV AI) est notamment utilisé dans cette thèse. Il a une résolution spatiale de $1^\circ \times 1^\circ$. Les valeurs de UV AI sont produites à l'aide de l'algorithme OMAERUV décrit en détail dans [Torres et al. \[2007\]](#). L'indice aérosol UV mesure la différence entre la réponse de l'atmosphère aux radiations UV et celle d'une atmosphère théorique purement moléculaire. Cet indice s'exprime comme suit :

$$AI = 100 * \log\left(\frac{I_{360nm_{mesure}}}{I_{360nm_{calculé}}}\right) \quad (2.35)$$

Ainsi, cet indice est positif lorsque OMI sonde des aérosols absorbant, négatif lorsqu'il sonde des aérosols non absorbant et proche de zéro en l'absence d'aérosol.

2.2.4 Microwave Limb Sounder - MLS

Le satellite Microwave Limb Sounder (MLS) est l'un des quatre instruments de la mission EOS (Earth Observing System) de la NASA, qui consiste en une constellation de satellites en orbite polaire observant la Terre et son atmosphère. MLS a été lancé le 15 juillet 2004 et fournit des mesures de concentration atmosphérique de nombreuses espèces en phase gazeuse en détectant les émissions thermiques dans le domaine des micro-ondes entre 118 GHz et 2,5 THz [Waters et al., 2006] causées par les molécules de l'atmosphère. MLS fait partie du train de satellites "A-train" comme CALIPSO, et dispose ainsi d'une couverture spatiale globale avec en moyenne 15 orbites par jour. La gamme de longueurs d'onde utilisée par MLS permet à l'instrument de conduire des mesures en présence de nuages de glace ou de couches d'aérosols.

Dans cette thèse, les produits de niveau 2 de rapport de mélange de diverses espèces sont exploités. C'est le cas des espèces pertinentes pour l'étude des PSC ou des panaches d'aérosols, à savoir H₂O, HNO₃, O₃ et CO et CH₃CN. Ces produits ont une résolution horizontale de 165 km x 3 km et une résolution verticale entre 1,5 et 6 km selon les domaines. De plus amples informations sur ces produits sont fournies par [Livesey et al., 2007]. Selon le document discutant la qualité des produits de MLS, aux niveaux de pression correspondant à la basse et moyenne stratosphère, la précision de MLS est entre 8% et 15% pour les mesures de H₂O et comprise entre 9 et 19 ppb pour les mesures de CO. Les mesures de HNO₃ en stratosphère sont précises à ±0,6 ppb. Enfin, la précision sur les concentrations de O₃ va de 0,03 à 0,2 ppm selon le domaine de la stratosphère.

2.2.5 IASI

Les instruments IASI (pour *Infrared Atmospheric Sounding Interferometers*) sont portés par les satellites Metop en orbite héliosynchrone. Ils ont été lancés en 2006 (IASI-A, fin de vie en 2021), 2012 (IASI-B) et 2018 (IASI-C). Chaque instrument sonde l'atmosphère terrestre par fauchées de 2200 km contenant chacune 30 champs de vue, chacun contenant 4 pixels. Cette méthode d'observation permet à IASI d'observer toute position terrestre deux fois par jour [Clerbaux et al., 2009].

Les instruments IASI sont des spectromètres infrarouge à transformée de Fourier qui mesurent le spectre de radiances infrarouges de la Terre et l'atmosphère entre 645 and 2760 cm⁻¹ (3,62 and 15,5 μm) pour chaque pixel. Les profils de température peuvent être déduits des radiances observées dans les bandes d'absorption du dioxyde de carbone à environ 700 et 2300 cm⁻¹. [Bouillon et al., 2022] ont calculé les températures atmosphériques à 10 niveaux compris entre 750 et 7 hPa en sélectionnant les voies de IASI les plus sensibles à la température, et en injectant les radiances de ces voies dans un réseau de neurones artificiels (ANN). Cet ANN a été entraîné en utilisant les radiances IASI en entrée dans le but de concorder avec les températures de réanalyses de ERA5 en sortie. Les comparaisons entre les sorties de l'ANN avec les données de ERA5 ainsi que celles de diverses radiosondes ont montré un très bon accord entre 750 et 7 hPa. Une série temporelle de températures atmosphériques allant de

2008 à 2020 a ainsi été construite avec cette méthode, basée sur les mesures de IASI-A de 2008 à 2017 IASI-A observations et celles de IASI-B de 2018 à 2020.

2.3 Calcul de masse à partir de mesures satellites

Cette section illustre une application des mesures satellites utilisée à plusieurs reprises dans cette thèse et en décrit la méthode. Les mesures de concentration d'espèces chimiques fournies par MLS ou les mesures de coefficient d'extinction des aérosols réalisées par OMPS sont parfois exploitées sans plus de traitement. Il est fréquent par exemple de moyenner la concentration d'une espèce dans un domaine donné et d'en suivre l'évolution temporelle au cours d'une saison, sur le long terme, ou encore à la suite d'un évènement spécifique. Mais il est aussi possible d'utiliser ces mesures pour calculer la masse d'une espèce chimique, ou d'aérosols, dans un domaine donné. Cette section présente la méthode pour calculer ces masses dans le cas d'une espèce chimique en phase gazeuse avec MLS, et dans le cas d'aérosols avec OMPS. Dans les résultats présentés par la suite, les erreurs fournies pour les valeurs de masses d'aérosols et de phases gazeuses viennent de la propagation des incertitudes fournies pour les mesures brutes de OMPS et MLS respectivement. Pour ces deux méthodes, on se place dans le cadre de l'hypothèse selon laquelle l'atmosphère terrestre est en équilibre hydrostatique, ce qui permet d'écrire la relation suivante, où P est la pression, ρ la masse volumique de l'air, g l'accélération de la pesanteur et z l'altitude :

$$dP = -\rho g dz \quad (2.36)$$

2.3.1 Calcul de masse d'une espèce gazeuse à partir des mesures de concentration de MLS

Les mesures de MLS sont fournies en rapport de mélange volumique. Le rapport de mélange volumique d'une espèce X (noté VMR_X ici) représente le nombre de molécules de X par rapport au nombre de molécules d'air sec par unité de volume. Ce nombre est sans unité, et selon l'abondance de l'espèce X , VMR_X est généralement multiplié par 10^6 ou 10^9 pour être exprimé en ppmv (partie par million en volume) ou ppbv (partie par milliard en volume) respectivement. Dans ce manuscrit, les rapports de mélange mentionnés sont toujours volumiques, et par simplification ppm et ppb désignent ppmv et ppbv.

On note P_{bas} et P_{haut} les limites basses et hautes du domaine choisi, en niveaux de pression (attention, $P_{\text{bas}} > P_{\text{haut}}$). La méthode consiste à estimer le nombre total de molécules d'air dans le domaine atmosphérique choisi, et par ailleurs à convertir les profils de rapport de mélange en rapport de mélange moyen sur le domaine. Ensuite, il ne reste plus qu'à convertir le nombre de molécules X du domaine en masse pour obtenir le résultat escompté.

Pour convertir les profils de VMR_X en rapport de mélange de X sur la colonne atmosphérique partielle entre P_{bas} et P_{haut} , on calcule le rapport de la colonne partielle de l'espèce X ($X_{col. part.}$) à la colonne partielle d'air ($air_{col. part.}$). Pour VMR_X , on utilise généralement la valeur quotidienne moyenne du domaine spatial considéré. À noter que P_{demi} désigne une échelle de pression décalée par rapport à l'échelle de pression propre aux mesures, qui représente donc les limites de chaque couche verticale : $P_{demi, i} = \exp(\frac{\ln(P_i) + \ln(P_{i+1})}{2})$. Dans les formules suivantes, M_{air} est la masse molaire de l'eau et g l'accélération de la pesanteur, prise égale à 9.8 m.s^{-2} .

$$X_{col. part.} = \sum_{i=bas}^{haut} \frac{VMR_{X, i} * \Delta P_{demi, i}}{gM_{air}} \quad (2.37)$$

$$air_{col. part.} = \sum_{i=bas}^{haut} \frac{\Delta P_{demi, i}}{gM_{air}} \quad (2.38)$$

$$VMR_{col., X} = \frac{X_{col. part.}}{air_{col. part.}} \quad (2.39)$$

Par ailleurs, on calcule le nombre total de molécules d'air dans le domaine considéré.

$$N_{molecules\ air} = S_{utile} * N_A * air_{col. part.} \quad (2.40)$$

Avec N_A le nombre d'Avogadro et S_{utile} la surface du domaine considéré, entre ses limites en latitude et longitude lat_{min} , lat_{max} , lon_{min} et lon_{max} :

$$S_{utile} = 2\pi R_{terre}^2 [\sin(lat_{max} \frac{\pi}{180}) - \sin(lat_{min} \frac{\pi}{180})] * \frac{|lon_{max} - lon_{min}|}{360} \quad (2.41)$$

$$air_{col. part.} = \frac{P_{demi, bas} - P_{demi, haut}}{gM_{air}} \quad (2.42)$$

Puis, en multipliant ce nombre total de molécule d'air du domaine par le $VMR_{colonne, X}$ précédemment calculé, on obtient le nombre total de molécules X dans le domaine considéré :

$$N_{molecules, X} = N_{molecules, air} * VMR_{col. X} \quad (2.43)$$

Enfin, il ne reste plus qu'à multiplier ce nombre de molécules par la masse molaire de X et le diviser par le nombre d'Avogadro pour obtenir la masse totale de X dans le domaine :

$$m_X = \frac{M_X * N_{molecules, X}}{N_A} \quad (2.44)$$

La formule complète peut être exprimée comme suit :

$$m_X = M_X S_{utile} \sum_{i=bas}^{haut} VMR_X \frac{P_{demi, i} - P_{demi, i+1}}{gM_{air}} \quad (2.45)$$

Pour calculer la masse d'une espèce à l'échelle du globe, comme cela est nécessaire pour l'étude des injections stratosphériques causées par des éruptions volcaniques ou des feux de forêt, il est d'usage de diviser le globe en bande de latitudes de quelques degrés, afin d'éviter de moyenniser les mesures de MLS sur une trop grande zone. Cela aurait pour effet d'introduire d'importantes incertitudes dans les estimations. On préfère calculer des masses sur des sous-domaines, puis sommer ces résultats intermédiaires pour estimer la masse totale.

2.3.2 Calcul de masse d'aérosols à partir des mesures d'extinction de OMPS

De manière similaire à la section précédente, il est possible d'utiliser les mesures de coefficient d'extinction de OMPS pour estimer une masse d'aérosols dans un domaine donné. La méthode est proche de celle décrite dans la section précédente, mais ici la donnée mesurée est un coefficient d'extinction, noté α , en km^{-1} , et elle est fournie en fonction de l'altitude, de 10,5 km à 40,5 km. D'un côté, on convertit ces valeurs d'extinction en une colonne partielle massique d'aérosols ($aer_{col. part. mas.}$), que l'on divise par la colonne partielle massique d'air ($air_{col. part. mas.}$) afin d'obtenir un rapport de mélange massique intégré entre les deux bornes choisies ($VMR_{aer. col. mas.}$). Pour cela, le coefficient massique d'extinction, noté ϵ intervient. Celui-ci s'exprime en m^2g^{-1} , représente une extinction surfacique par unité de masse d'aérosol [Nikonovas et al., 2017] et peut être mesuré in situ ou calculé par la théorie de Mie. Sa valeur dépend du type de particule. Pour des aérosols carbonés, ses valeurs sont comprises entre 3 et 6 m^2g^{-1} [Hobbs et al., 1996, Reid et al., 2005, Chand et al., 2006, Nikonovas et al., 2017, Peterson et al., 2018]. Pour les aérosols d'origine volcanique, ϵ prend des valeurs comprises entre 0.6 et 0.8 m^2g^{-1} [Turnbull et al., 2012].

Par ailleurs, on calcule la masse totale des molécules d'air dans le domaine considéré. Enfin, il ne reste qu'à multiplier ces deux quantités pour obtenir une masse d'aérosols. Les formules utilisées pour cette méthode sont fournies ci-dessous. Ici, $Z_{demi, i}$ désigne les altitudes intermédiaires entre les niveaux de OMPS. Comme l'échelle d'altitude de OMPS va de 10,5 à 40,5 km par pas de 1 km, l'échelle intermédiaire va donc de 10 à 40 km par pas de 1 km.

$$aer_{col. part. mas.} = \sum_{i=bas}^{haut} \frac{\alpha_i * \Delta Z_{demi, i}}{\epsilon} \quad (2.46)$$

$$air_{col. part. mas.} = \sum_{i=bas}^{haut} \frac{\Delta P_{demi, i}}{g} \quad (2.47)$$

$$VMR_{aer., col., mas.} = \frac{aer_{col. part. mas.}}{air_{col. part. mas.}} \quad (2.48)$$

Par ailleurs, on calcule la masse totale des molécules d'air dans le domaine considéré.

$$m_{molecules\ air} = S_{utile} \frac{P_{bas} - P_{haut}}{g} \quad (2.49)$$

Avec P_{bas} et P_{haut} la pression en bas et en haut du domaine, et S_{utile} la surface, calculée comme indiqué par l'équation (2.41).

Enfin, on multiplie les quantités $VMR_{aer., col., mas.}$ et $m_{molecules\ air}$ pour obtenir la masse d'aérosols présents dans le domaine, qui peut donc être exprimée comme suit :

$$m_{aer} = \frac{aer_{col. part. mas.}}{air_{col. part. mas.}} S_{utile} \frac{P_{bas} - P_{haut}}{g} \quad (2.50)$$

Contrairement à la section précédente, où la pression était l'échelle de coordonnées des mesures MLS, ici la pression est exprimée en fonction de l'altitude. Ainsi, les pressions limites du domaine P_{bas} et P_{haut} qui interviennent dans l'équation (2.49) pour exprimer la colonne massique partielle d'air sont moyennées sur la zone spatiale considérée. Ce terme ne se simplifie donc pas avec le calcul de l'équation (2.47), contrairement au cas de la section précédente. Cela justifie également la démarche de diviser le globe en fines bandes de latitude afin de décomposer les calculs de masse sur d'importants domaines : en effet, à l'échelle du globe, la pression à une même altitude varie significativement et cela entraînerait d'importantes erreurs.

2.4 La température pour le traitement lidar et l'étude des PSC

2.4.1 Sensibilité du traitement lidar à la température

La température est une donnée primordiale dans l'étude des nuages et aérosols stratosphériques. Comme les figures 1.9, 1.11 et 1.10 le montrent, la composition des aérosols, la formation de nuages et le type de nuage formé dépendent des températures. La 1.9 montre par exemple qu'un changement de l'ordre de 1 K peut drastiquement changer la composition d'un aérosol. Un écart de 1 K peut également changer l'interprétation d'une mesure de PSC selon les températures d'existence détaillées en section 1.2.4. Les procédures d'inversion décrites en sections 2.1.4 font également intervenir les profils de température. La température est utilisée pour calculer les composantes moléculaires des coefficients d'extinction et de rétrodiffusion. Elle intervient aussi dans le calcul de la densité d'azote pour l'inversion inélastique.

Il est donc crucial de disposer de profils de température de qualité pour le traitement et l'interprétation des mesures lidar. Différents jeux de données ont été testés et comparés dans le cadre de la thèse. Ils sont de trois

natures : des radiosondages c'est-à-dire des mesures locales, des mesures spatiales ou encore des produits de réanalyse. Les mesures par radiosondes semblent idéales car elles consistent en des mesures locales et directes. Cependant, comme cela sera développé dans la section suivante, ces mesures ne peuvent pas être exploitées dans n'importe quel contexte et demandent d'être utilisées avec précaution.

2.4.2 Radiosondes à DDU

Météofrance réalise des mesures de température par radiosondes à DDU depuis 1957. Ces données, auxquelles se sont ajoutées au fil du temps des mesures de vitesse et direction des vents et de position, sont assimilées par les modèles climatiques. De telles mesures sont d'une grande richesse car elles couvrent une région par ailleurs très faiblement échantillonnée par les réseaux de mesures. Un ballon est lâché quotidiennement à environ 9 heures du matin, heure locale de DDU, ce qui correspond à 23 :00 UTC du jour précédent. Ce ballon est lancé juste à côté du lidar. Selon les conditions, les radiosondes atteignent une altitude entre 15 et 30 km avant que le ballon n'éclate et que la sonde ne retombe.

Les profils de température mesurés par ces sondes sont utilisés principalement pour l'interprétation des mesures du lidar et pour le contrôle des autres jeux de données de température. En effet, leur utilisation pour les procédures d'inversion est problématique. Tout d'abord, parce que les profils mesurés ne sont pas complets à cause de l'éclatement parfois prématurée du ballon. Cela est notamment le cas en hiver, ce qui est d'autant plus problématique que c'est la saison des PSC. Les inversions font intervenir l'intégrale verticale du coefficient d'extinction moléculaire, calculé à partir des données de température. Il est donc important d'avoir un profil complet, c'est-à-dire qui couvre à minima la zone d'occurrence des PSC, jusque 30 km. La figure 2.9a illustre la distribution des altitudes d'éclatement des ballons en hiver et en été. Ici la distinction entre hiver et été est basique et ne tient pas compte de critère météorologique : l'hiver correspond aux mois de juin à septembre inclus, l'été est le reste de l'année. Cette définition de l'hiver correspond à la saison des PSC, bien que le vortex soit généralement présent sur une plus longue période. La figure 2.9a montre qu'en été, les ballons éclatent très majoritairement entre 20 et 30 km, alors qu'en hiver l'altitude d'éclatement est généralement plus basse, principalement entre 15 et 25 km. Cela confirme également qu'il est très rare que les radiosondes dépassent 30 km. La figure 2.9b montre quant à elle la distance à laquelle les sondes éclatent par rapport à la station, en hiver et en été. Il apparaît que les ballons parcourent de plus grandes distances en hiver qu'en été. Cela est d'autant plus vrai que la figure 2.9a a montré que ces ballons éclatent à plus basse altitude. La présence du vortex polaire dans la stratosphère hivernale explique ces différences : les forts vents qui le caractérisent transportent les ballons sur de plus grandes distances qu'en été.

Un autre inconvénient à l'utilisation des radiosondes pour les traitement des mesures lidar concerne l'inversion inélastique. Celle-ci fait intervenir la dérivée du profil de température. Hors, de par la nature des mesures par radiosondes, les profils mesurés présentent une forte variabilité. La dérivée de ces profils ferait apparaître des

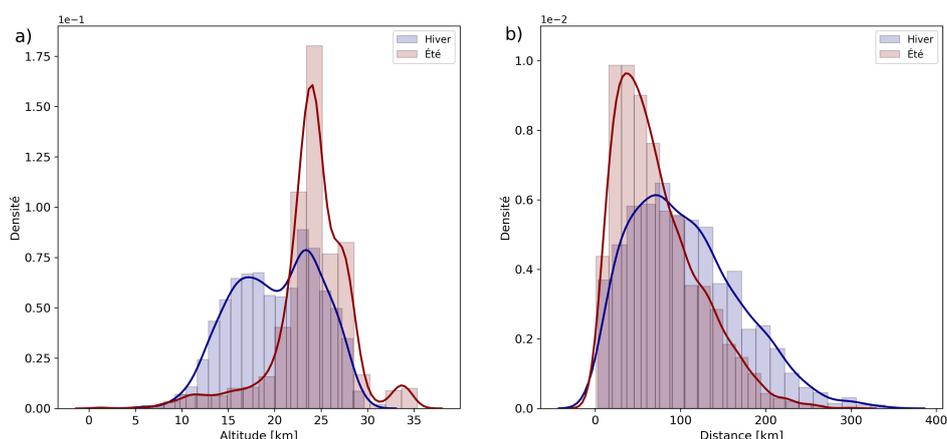


FIGURE 2.9 – (a) Distributions des altitudes d’éclatement des radiosondes lancées quotidiennement à DDU, en hiver et en été. (b) Distributions des distances à laquelle les radiosondes éclatent par rapport à DDU, en hiver et été.

artefacts dans les variables calculées. Les profils de température des produits de réanalyse sont en général bien plus adaptés à de telles manipulations numériques, comme cela est illustré dans la section suivante (voir figures 2.12 et 2.13).

Enfin, le dernier point important concerne la dérive horizontale des ballons. En effet, la position littorale de DDU et le climat de l’Antarctique impliquent de forts vents. Ainsi, les ballons peuvent parcourir de longues distances avant d’éclater, et les températures que les sondes mesurent ne sont pas nécessairement représentatives de DDU. Cela est déjà en partie illustré par la figure 2.9b, qui montre qu’en hiver les ballons éclatent régulièrement à plus de 100 km de DDU. Pour aller plus loin, la figure 2.10 montre la localisation des radiosondes de 2010 à 2020, de juin à septembre, lorsqu’elles se situent entre 15 et 25 km - domaine principal d’occurrence des PSC. Par comparaison, les points représentent la grille du produit de réanalyse ERA5 utilisé dans cette thèse. Ce produit est présenté dans la section suivante.

Pour compléter cette discussion et illustrer en quoi cette dérive horizontale peut avoir un impact concret sur l’interprétation des mesures effectuées à DDU, la figure 2.11 présente six exemples de champs de températures sur la même zone que la figure 2.10. Ces exemples témoignent de la diversité des configurations de variations locales de température autour de DDU et soulignent l’importance de prendre en compte la dérive horizontale des radiosondes. Les profils de températures mesurés par ces radiosondes ne doivent pas être interprétés comme des profils purement verticaux au dessus de la station, notamment en hiver. Comme cela est également discuté au chapitre 3, en section 3.3.2, cette dérive importante des ballons peut être un problème dans l’interprétation des mesures lidar.

Pour ces raisons, les profils de température mesurés par les radiosondes lancées à DDU ne sont pas utilisés pour l’inversion des mesures lidar. Cependant, ces données sont très importantes pour l’interprétation des mesures,

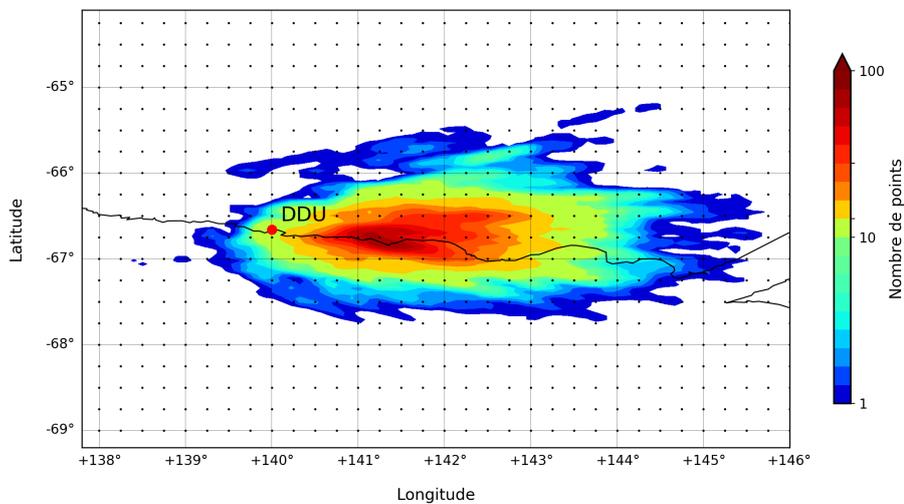


FIGURE 2.10 – Répartition spatiale des radiosondes lancées à DDU de 2010 à 2020 de juin à septembre, entre 15 et 25 km.

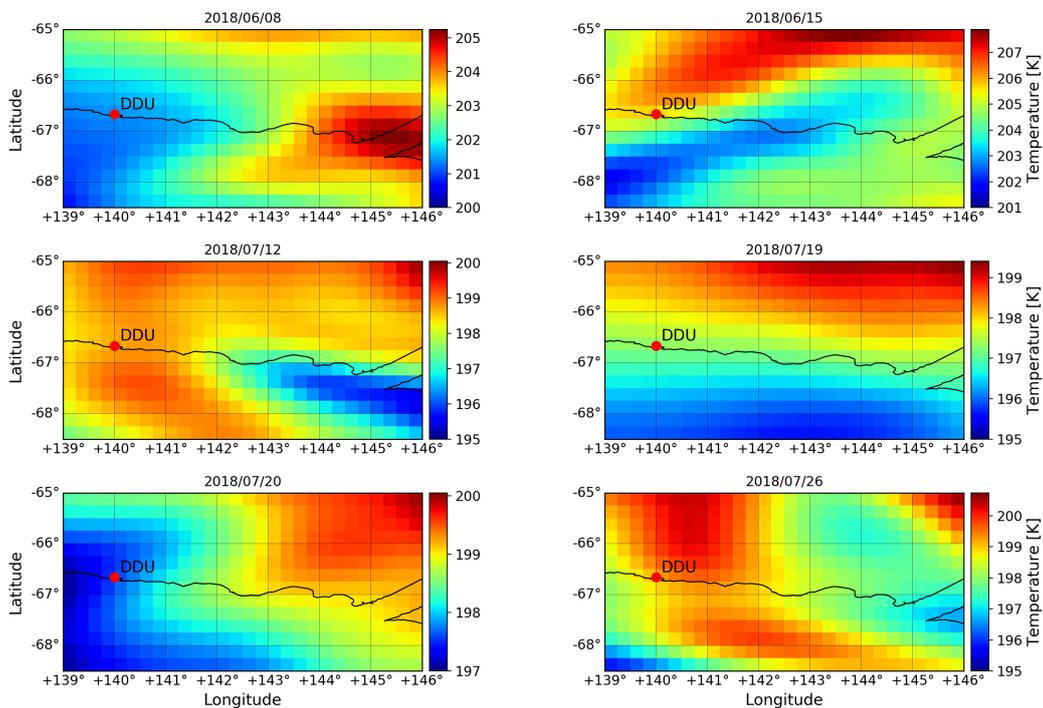


FIGURE 2.11 – Champs de température de réanalyse de ERA5 à 100 hPa sur le domaine spatial correspondant à la dérive horizontale des radiosondes présentée en figure [2.10](#).

au cas par cas, ou encore pour estimer la précision des différentes sources de données de température. Dans les sections suivantes, les températures fournies par les réanalyses NCEP et ERA5 ainsi que par le satellite IASI sont présentées puis comparées à celles des radiosondes de DDU.

2.4.3 Produits de réanalyse

Comme cela sera discuté plus en détail en section 2.4.4 au sujet des sources de données de température pertinentes pour l'étude des nuages et aérosols stratosphériques et pour le traitement des mesures lidar, les températures des produits dits de réanalyse sont souvent nécessaires pour compléter ou remplacer les mesures de radiosondes locales. Pour cette thèse, deux produits de réanalyse sont considérés : la 5^{ème} génération des produits de réanalyse du centre européen pour les prévisions météorologiques à moyen terme (European Centre for Medium-Range Weather Forecasts - ECMWF), nommée ERA5, et les réanalyses produites par le centre national américain pour la protection de l'environnement (National Centers for Environmental Protection - NCEP) en collaboration avec le centre national américain pour la recherche atmosphérique (National Center for Atmospheric Research - NCAR), nommées NCEP.

ERA5 est un produit d'assimilation de données à 4 dimensions disponible depuis janvier 2019. ERA5 est basé sur le système de prévision Integrated Forecasting System (IFS) Cy41r2 et fournit un ensemble de données sur l'atmosphère, la terre et les océans de 1979 à nos jours. Une description détaillée de ces produits est fournie par Hersbach et al. [2020]. Le produit de température utilisé dans ce manuscrit est fourni sous la forme de profils verticaux à 35 niveaux de pression, de 975 hPa à 2 hPa. Les profils sont disponibles 4 fois par jour, à 00 :00, 06 :00, 12 :00 et 18 :00 UTC. Lorsque ERA5 est utilisé pour la station française DDU, une interpolation horizontale linéaire est réalisée à partir de la grille initiale d'une résolution de $0.25^\circ \times 0.25^\circ$ à la position de DDU. Cette interpolation de ERA5 à DDU est aussi exploitée pour calculer la tropopause dynamique, qui fournit les valeurs de tropopause utilisées dans ce manuscrit sauf mention contraire.

Le produit de réanalyse NCEP est le fruit d'une collaboration entre NCEP et NCAR. Ces réanalyses sont disponibles depuis mai 1994 et fournissent des jeux de données couvrant la période de 1957 à nos jours. Une description détaillée de ces jeux de données est publiée par Kalnay et al. [1996]. Le produit de température utilisé dans ce manuscrit est un fichier quotidien correspondant à des données à 00 :00 UTC fourni par la NOAA (National Oceanic and Atmospheric Administration), qui dispose déjà d'une sortie pour DDU.

2.4.4 Comparaison des températures : NCEP, ERA5, IASI et radiosondes

Historiquement, le produit de température des réanalyses NCEP était utilisé pour traiter les mesures du lidar à DDU. Ce produit est disponible quotidiennement depuis 1994, facilement accessible et propose une sortie interpolée à la station française. Ce dernier point rend son exploitation très avantageuse. Jusqu'à la sortie des réanalyses

ERA5, NCEP était donc globalement utilisé. Les profils de température NCEP sont répartis sur 18 niveaux de pression, de 1000 hPa à 0,4 hPa (de la surface à environ 45-50 km). Entre 10 et 30 km, c'est-à-dire le principal domaine utilisé dans les études présentées ici, les profils sont répartis sur 9 niveaux de pression. Les profils sont ensuite interpolés entre 0 et 50 km avec une interpolation cubique par morceaux, à l'aide de la méthode généralement appelée "cubic spline interpolation". À noter que les sorties NCEP correspondent à 12 :00 UTC, il y a donc un décalage d'environ 12 heures entre les données NCEP et les lâchers de ballon.

Depuis janvier 2019, le produit de réanalyse européen ERA5 est disponible. S'il ne dispose pas de sortie directe pour la localisation de DDU, ce produit présente de nombreux avantages. Comme décrit en section [2.4.3](#), le produit utilisé dans cette thèse est disponible quatre fois par jour à 00 :00, 06 :00, 12 :00 et 18 :00 UTC. Cela permet de diminuer le délai entre le produit de réanalyse et le lâcher des radiosondes, par rapport au NCEP. La résolution spatiale initiale est de $0,25^\circ \times 0,25^\circ$, puis le produit est interpolé linéairement à DDU. En terme de résolution verticale, les profils de température sont répartis sur 35 niveaux de pression entre 975 hPa et 2 hPa (de la surface à environ 40-45 km selon la saison). Le domaine entre 10 et 30 km comprend 12 niveaux, la résolution verticale est donc meilleure que pour le produit de NCEP. Comme pour les températures de NCEP, les profils sont interpolés par des polynômes cubiques.

Enfin, le produit de température basé sur les mesures de radiance de IASI, présenté en section [2.2.5](#), est disponible depuis fin 2021. Ce produit est très intéressant pour le traitement des mesures lidar car il s'agit de mesures et non de données de réanalyse. Par ailleurs, la très grande résolution spatiale des mesures de IASI est un atout majeur. Dans une zone de 0.3° de longitude et de 0.2° de latitude autour de DDU, IASI dispose d'environ 7 mesures par jour (avec un minimum de 1 et un maximum de 15 profils par jour). Ces nombreux profils permettent un délai temporel réduit avec les mesures lidar. Enfin, la résolution verticale est plus faible que pour les produits de réanalyse, avec seulement 11 niveaux entre 750 et 2 hPa (de 2 à environ 40-45 km selon la saison), avec 7 niveaux de pression entre 10 et 30 km. Malgré cette résolution verticale légèrement plus faible que pour NCEP et ERA5, son fort échantillonnage et le fait qu'il s'agisse de mesures rendent le produit de température de IASI très pertinent. Enfin, comme pour les produits de réanalyse, les profils de température IASI sont interpolés entre les deux niveaux de pression extrêmes afin de pouvoir être rééchantillonnés et ainsi comparés.

Les figures [2.12](#) et [2.13](#) montrent deux exemples de profils de température de NCEP, ERA5, IASI et de la radiosonde de DDU en hiver et en été, les 07 juillet et 10 janvier 2020 respectivement. La figure [2.12a](#) représente la température en fonction de la pression, la figure [2.12b](#) en fonction de l'altitude et la figure [2.12c](#) est la dérivée de la température en fonction de l'altitude. Cette dernière illustre le propos de la section précédente : de par la nature de la mesure par radiosonde et de par son échantillonnage vertical, dériver un tel profil induit un fort bruit et donc des artefacts non désirés dans les procédures d'inversion des mesures lidar. Si les figures [2.12a](#) et b comparent les profils de température en fonction de la pression et de l'altitude, c'est parce que la coordonnée verticale naturelle de ces données est la pression. Les données de ERA5 et IASI sont uniquement fournies en fonction de la pression,

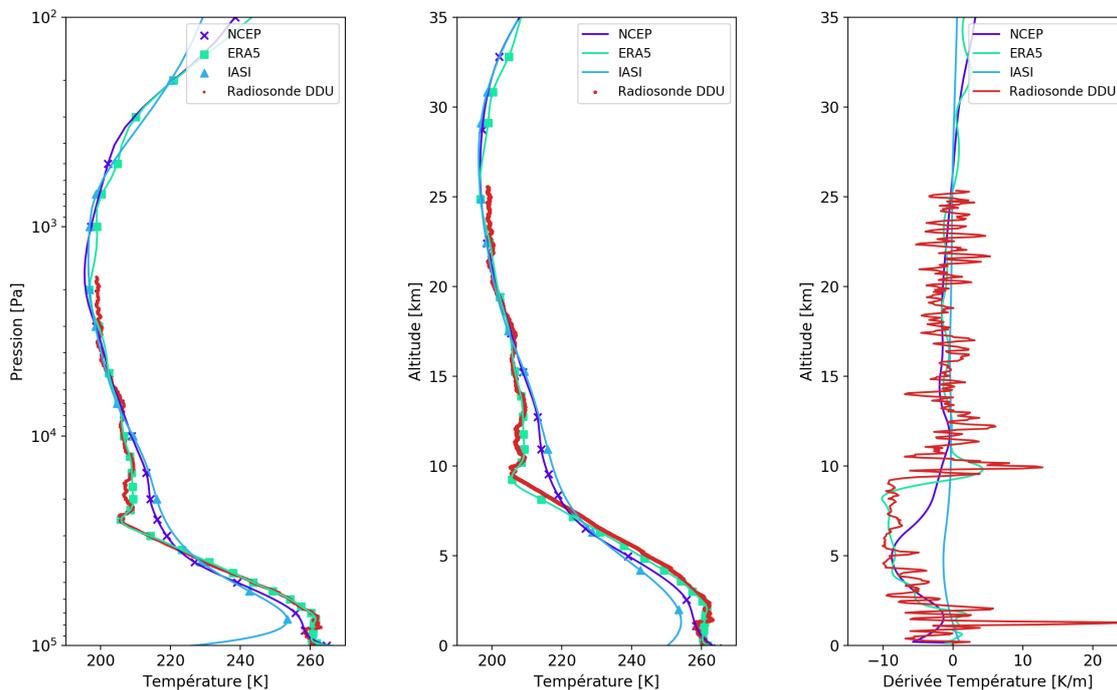


FIGURE 2.12 – Profils de températures pour le 07 juillet 2020, fournis par NCEP (bleu foncé), ERA5 (vert), IASI (bleu ciel) et la radiosonde de DDU (rouge), en fonction de la pression, en Pa (a) et de l'altitude, en km (b). Dérivées verticales de ces profils de température en fonction de l'altitude (c).

et les radiosondes mesurent simultanément altitude et pression. Hors, les mesures du lidar sont naturellement acquises en fonction de l'altitude. La conversion de pression en altitude (et inversement) est délicate et introduit nécessairement des approximations. Les profils de ERA5 et de la radiosonde sur la figure 2.12a en fournissent une illustration : aux environs de la tropopause, il y a un très bon accord entre ces deux profils, mais sur la figure 2.12b, on remarque un décalage. Cela est directement dû au changement de coordonnées. À noter que les données de NCEP ne sont pas affectées par ce changement de coordonnées car l'échelle d'altitude correspondante est également fournie dans le produit de réanalyse.

La figure 2.13 donne un exemple de profils de température à DDU en été, le 10 janvier 2020. Ces profils sont intéressants car ils illustrent un défaut dû à la faible résolution verticale de IASI. On peut voir que les niveaux de pression fournis (les triangles bleus sur la figure 2.13) ne couvrent pas la région de la tropopause. Donc, lors de l'interpolation verticale, l'inversion de température est mal résolue et cela aboutit à un écart de presque 10 K par rapport aux mesure de la radiosonde. Ce problème était déjà visible sur la figure 2.12, mais est plus visible en été en raison de la position de la tropopause à cette saison. Par ailleurs, la figure 2.13 illustre de nouveau le décalage causé par la conversion de l'échelle de la pression en altitude.

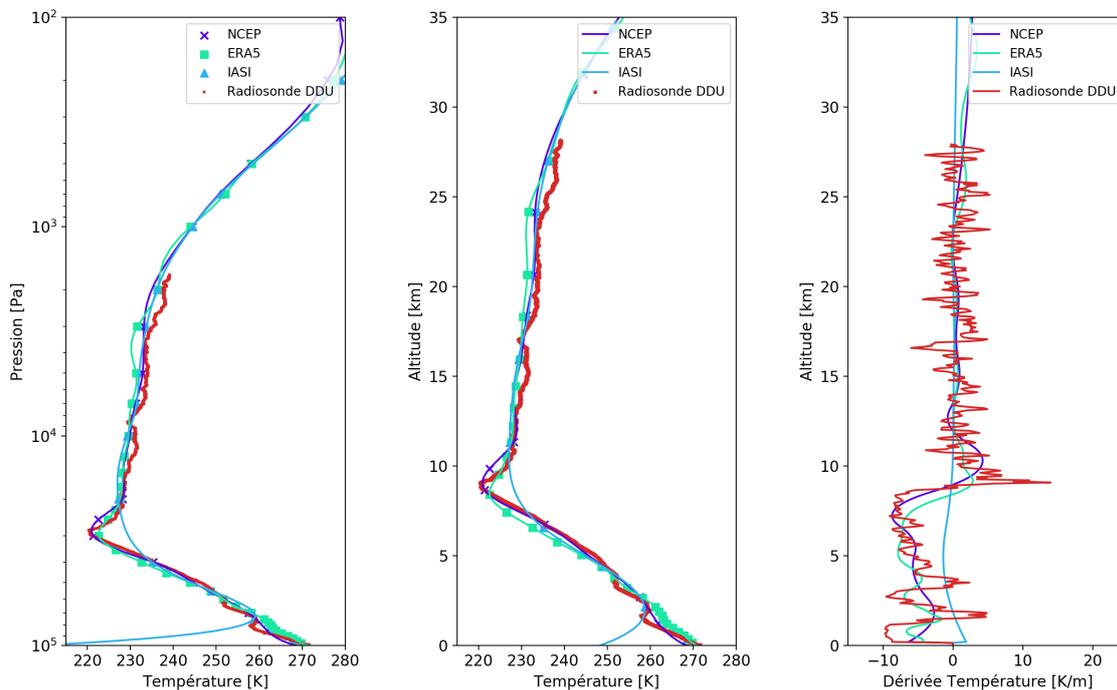


FIGURE 2.13 – Profils de températures pour le 10 janvier 2020, fournis par NCEP (bleu foncé), ERA5 (vert), IASI (bleu ciel) et la radiosonde de DDU (rouge), en fonction de la pression, en Pa (a) et de l'altitude, en km (b). Dérivées verticales de ces profils de température en fonction de l'altitude (c).

Afin d'évaluer les données de température présentées par rapport aux mesures de Météofrance, les profils sont rééchantillonnés sur une échelle verticale allant de 0 à 35 km avec un pas de 300 m. Pour éviter une interpolation périlleuse des mesures par radiosondes, les mesures sont regroupées et moyennées par intervalle de 300 m. Les figures 2.14, 2.15 et 2.16 montrent les écarts entre les températures fournies par NCEP, ERA5 et IASI respectivement et les mesures des radiosondes de DDU (notés $\Delta T_{\text{NCEP-RS}}$, $\Delta T_{\text{ERA5-RS}}$ et $\Delta T_{\text{IASI-RS}}$), de 2007 à 2020 (2008 à 2020 dans le cas de IASI). La ligne noire pointillée indique la position de la tropopause dynamique. Pour NCEP, ERA5 et IASI, l'erreur quadratique moyenne, le biais et la déviation standard par rapport aux températures des radiosondes entre 15 et 25 km sont rassemblées dans le tableau 2.1.

Tout d'abord, en comparant rapidement les figures 2.14, 2.15 et 2.16, il apparaît directement que NCEP est moins proche des mesures par radiosondes que ERA5 et IASI. En troposphère, entre 3 et 9 km, NCEP semble avoir un fort biais positif. En stratosphère, $\Delta T_{\text{NCEP-RS}}$ semble plus faible, mais reste bien supérieur aux écarts observés sur les figures 2.15 et 2.16.

Le tableau 2.1 confirme cette impression visuelle. Ce tableau ne concerne que la zone située entre 15 et 25 km, qui est le domaine principal d'occurrence des PSC. Sur ce domaine, $\Delta T_{\text{NCEP-RS}}$ présente un écart-type de 1,61 K

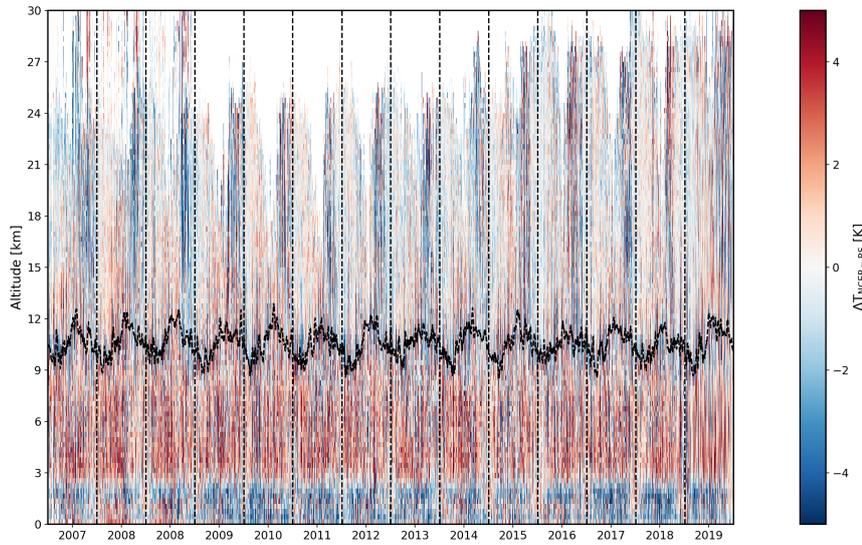


FIGURE 2.14 – Différence entre les températures de NCEP et des radiosondes lancées quotidiennement à DDU, de 2007 à 2020 ($\Delta T_{\text{NCEP-RS}}$). La courbe noire en pointillés indique la position de la tropopause dynamique.

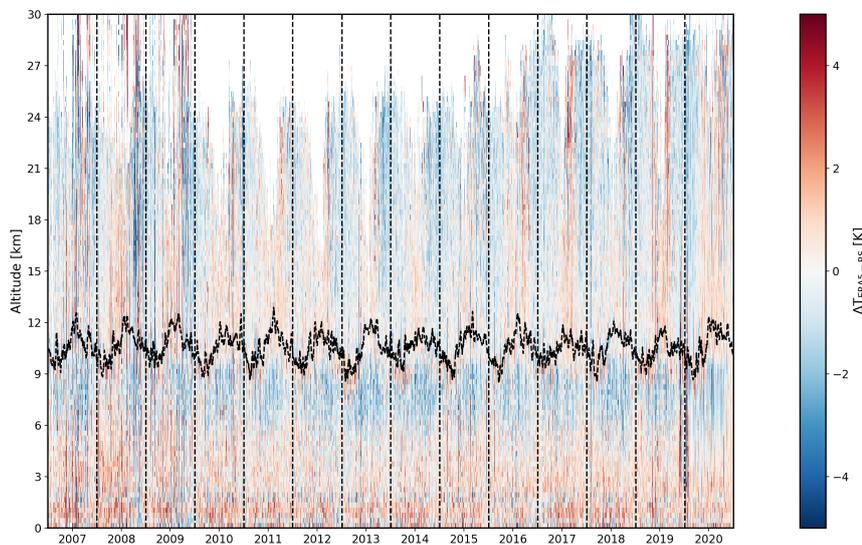


FIGURE 2.15 – Différence entre les températures de ERA5 et des radiosondes lancées quotidiennement à DDU, de 2007 à 2020 ($\Delta T_{\text{ERA5-RS}}$). La courbe noire en pointillés indique la position de la tropopause dynamique.

et 1,9 K pour l'année complète et l'hiver respectivement. En comparaison, l'écart-type de $\Delta T_{\text{ERA5-RS}}$ et $\Delta T_{\text{IASI-RS}}$ est entre 0,97 et 1,09 K. Par ailleurs, les trois jeux de données de températures présentent un biais négatif par rapport aux radiosondes, compris entre -0,3 et -0,5 K. Seule exception, ERA5 en hiver présente au contraire un très

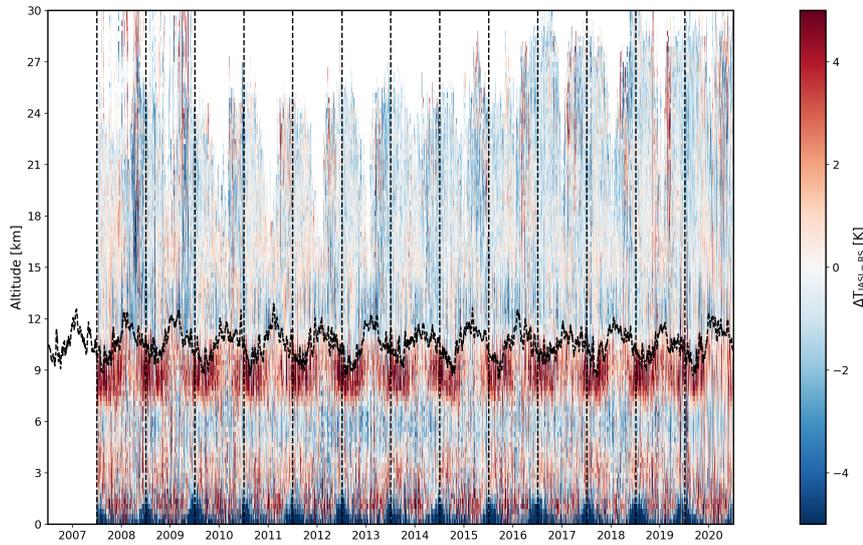


FIGURE 2.16 – Différence entre les températures de IASI et des radiosondes lancées quotidiennement à DDU, de 2007 à 2020 ($\Delta T_{IASI-RS}$). La courbe noire en pointillés indique la position de la tropopause dynamique.

	RMSE [K]	Biais [K]	Écart-type [K]
Année complète	—	—	—
$\Delta T_{NCEP-RS}$	1,64	-0,33	1,61
$\Delta T_{ERA5-RS}$	1,06	-0,31	1,01
$\Delta T_{IASI-RS}$	1,14	-0,46	1,04
Hiver	—	—	—
$\Delta T_{NCEP-RS}$	1,93	-0,32	1,9
$\Delta T_{ERA5-RS}$	0,98	0,15	0,97
$\Delta T_{IASI-RS}$	1,13	-0,28	1,09

TABLE 2.1 – Erreur quadratique moyenne (RMSE), biais et écart-type entre les températures fournies par NCEP, ERA5 et IASI et les mesures par radiosondes réalisées à DDU, pour toute l'année et l'hiver seul (juin à septembre inclus), entre 15 et 25 km. Paramètres calculés sur la période 2008-2020 pour permettre la comparaison avec IASI, non disponible pour l'année 2007.

léger biais positif de 0,15 K.

Les figures 2.15 et 2.16 révèlent un comportement particulier dans un domaine d'environ 3 km sous la tropopause. Le plus évident concerne IASI en été, avec de forts écarts par rapport aux températures mesurées localement, qui peuvent atteindre 4 K. Ce comportement s'explique en partie par l'interpolation des profils de température à partir de seulement 11 niveaux de pression. Comme la figure 2.13a le montre, l'échelle de pression de IASI ne couvre pas suffisamment la région de la tropopause en été, et cela empêche l'interpolation de rendre correctement compte de l'inversion de température à la tropopause, et aboutit à un écart positif par rapport aux radiosondes qui peut s'avérer significatif. À l'inverse, ERA5 est légèrement inférieur aux mesures des radiosondes sur ce domaine

sous la tropopause. Pour conclure, le tableau 2.1 montre que ERA5 fournit les températures les plus proches des valeurs mesurées par radiosondes. À ce titre, c'est le jeu de données de température qui est retenu pour le traitement des mesures lidar dans cette thèse. Toutefois, le produit de température issu des mesures IASI montre lui aussi de bonnes performances. Ce jeu de données, disponible depuis la fin de l'année 2021, est intéressant car il présente des caractéristiques différentes par rapport à ERA5. Le grand nombre de profils quotidiens peut permettre de disposer de mesures au plus proche temporellement des mesures lidar. Le fait que ces données soient issues de mesures permet aussi d'éviter certains écueils des produits de réanalyses comme la résolution des variations locales de températures causées par l'activité ondulatoire. Ainsi, les mesures de IASI pourraient être d'une grande utilité pour les futures études basées sur les mesures lidar de DDU.

2.5 Conclusion

Ce second chapitre a permis de présenter les différentes sources de données utilisées dans cette thèse, ainsi que les méthodes de traitement qui y sont couramment employées. Une attention particulière a été portée à la description du lidar stratosphérique situé à DDU car il constitue une pièce centrale de cette thèse. Comme cela a été mis en évidence dans la première section de ce chapitre, le traitement des mesures lidar est délicat. Les signaux acquis présentent généralement des SNR faibles et une grande attention doit être portée au traitement numérique de ces signaux afin de restituer au mieux les variables physiques d'intérêt.

Par la suite, les instruments spatiaux utilisés dans cette thèse ont été présentés. Ces instruments sont complémentaires du lidar sol de DDU. D'une part parce qu'ils apportent des mesures additionnelles de l'atmosphère au-dessus de DDU, qu'il s'agisse de concentration d'espèces en phase gazeuse pour MLS, de données de température pour IASI, de mesures d'aérosols pour OMPS et OMI ou encore d'autres mesures lidar pour CALIOP. D'autre part, ces instruments disposent d'une couverture globale qui vient pertinemment compléter le point de vue local des mesures effectuées à DDU. La section 2.3 a par exemple détaillé comment il était possible de convertir les mesures de MLS et de OMPS en estimations de masse d'une espèce gazeuse ou d'aérosols dans un domaine délimité de l'atmosphère. De telles méthodes sont adaptées à l'étude des injections stratosphériques d'aérosols afin de caractériser les événements étudiés, dans le cas d'éruption volcanique comme de feux de biomasse. De telles estimations permettent par exemple de modéliser au mieux ces phénomènes.

La dernière section du chapitre a permis de présenter les sources de données de températures pertinentes pour le traitement lidar et l'étude des PSC. Les nuages - et notamment les PSC - sont des processus à seuils contrôlés par la température. Ainsi, les données de température utilisées pour les étudier doivent être aussi précises que possible, puisque des écarts de seulement quelques Kelvin peuvent changer l'interprétation qui est faite de mesures et la lecture qui est faite d'une situation atmosphérique.

Enfin, nous avons montré en quoi les radiosondes lancées quotidiennement à DDU ne peuvent suffire au trai-

tement lidar, en raison de la nature de cette méthode de mesure mais aussi de l'importante dérive horizontale des ballons qui les portent. Cette dérive est particulièrement importante à DDU car la station est située au bord du continent Antarctique, où les vents sont forts, surtout en hiver. Ce point est problématique car il implique que les températures mesurées par la sonde ne sont pas nécessairement représentatives du contexte atmosphérique au dessus de DDU. C'est pour cette raison que d'autres sources de données de températures sont requises pour l'étude des PSC et des mesures lidar. Deux produits de réanalyse, NCEP et ERA5, et un produit de mesures du satellite IASI ont été comparés aux mesures par radiosondes à DDU, et cela a abouti à choisir ERA5 comme principale source de données de températures à DDU. C'est le principal produit de température considéré dans la suite de cette thèse.

Résumé du chapitre 2

- Le lidar Rayleigh Mie Raman installé à DDU a été présenté. Le principe et la mise en pratique des traitements appliqués aux mesures lidar pour remonter aux variables d'intérêts ont été passés en revue, et les incertitudes associées aux mesures estimées.
- Les instruments spatiaux utilisés dans cette thèse pour mener les études présentées dans les chapitres suivants ont été introduits. Il s'agit de CALIOP, OMPS, OMI, MLS et IASI, qui fournissent respectivement des mesures lidar, des mesures d'extinction et d'index UV aérosol, de concentrations de multiples phases gazeuses et de températures.
- Les méthodes de calcul de masse de phase gazeuse à partir de mesures de concentration et de masse d'aérosol à partir de mesures d'extinction ont été exposées. Ces méthodes seront utilisées dans les chapitres 4 et 5.
- Les différentes sources de données de température pertinentes pour l'exploitation des mesures lidar de DDU ont été présentées et comparées. Il a été établi que le produit de réanalyse ERA5 est le plus pertinent pour cette thèse. Il a été montré que les radiosondes lancées quotidiennement à DDU, qui fournissent la mesure la plus directe et la plus précise disponible à DDU, connaissent une dérive spatiale significative qu'il convient de prendre en compte lors de leur utilisation.

Chapitre 3

Étude des nuages stratosphériques polaires à DDU de 2007 à 2020

La compréhension des mécanismes contrôlant la formation des nuages stratosphériques polaires et leur impact sur l'ozone et le climat est cruciale, comme cela a été détaillé dans le chapitre 1. Par ailleurs ces processus que l'on peut qualifier de "régime de fond" de la stratosphère polaire, dans le sens où ils ne relèvent pas d'une réponse à une perturbation mais bien de phénomènes saisonniers, doivent être maîtrisés pour pouvoir appréhender la réponse du système climatique aux perturbations évoquées dans cette thèse.

C'est dans cet objectif que le lidar de DDU sert depuis de nombreuses années l'étude des PSC. Lors de cette thèse, j'ai eu l'occasion de travailler sur l'ensemble des mesures lidar acquises à la station française de 2007 à 2020. Ces mesures ont été utilisées pour établir une distribution des types de PSC observés à DDU ou encore pour calculer une tendance d'occurrences de PSC à DDU sur la période étudiée. Ces données sont d'une grande richesse et permettent de nombreuses études : il est possible, entre autres, de se concentrer sur les fines structures qui composent les champs de PSC sur des cas d'études précis, de comparer la climatologie observée à DDU selon les classifications utilisées, de comparer nos mesures à celles acquises par le lidar spatial CALIOP ou encore de s'intéresser à l'épaisseur moyenne des PSC par rapport à la zone stratosphérique disponible sous un certain seuil de température au moment de leur détection. Toutes ces études font l'objet d'une publication, en discussion dans *Atmospheric Chemistry and Physics*, intitulée "14 years of lidar measurements of Polar Stratospheric Clouds at the French Antarctic Station Dumont d'Urville". Cette publication est disponible en intégralité et en anglais en annexe A. Elle est en partie reproduite et traduite dans ce chapitre. Pour les besoins de ce manuscrit, les inévitables redondances avec les chapitres précédents ont été coupées, comme la présentation du lidar de DDU (2.1), des instruments spatiaux utilisés (2.2) ou encore la discussion sur les données de températures (2.4). Enfin, des commentaires ont pu être ajoutés aux discussions afin d'apporter à la cohérence du manuscrit.

3.1 Introduction

Les nuages stratosphériques polaires sont étudiés avec attention depuis des décennies, principalement pour leur rôle central dans la chimie de l'ozone. Les particules qui les composent sont des combinaisons de vapeur d'eau, (H_2O), d'acide nitrique (HNO_3) et d'acide sulfurique (H_2SO_4) dans différentes phases. Les PSC sont généralement observés sous forme de couches de différentes compositions chimiques. Ils se forment en hiver dans la stratosphère polaire lorsque la température chute sous des seuils de température, définis en section 1.2.4, qui dépendent des abondances de H_2O , HNO_3 , et de H_2SO_4 et de l'altitude. Le principal impact des PSC réside dans leur capacité à permettre des réactions chimiques hétérogènes qui convertissent les réservoirs stables de chlore et de brome en radicaux actifs, qui sont ensuite impliqués dans des cycles catalytiques destructeurs d'ozone en présence de lumière [Solomon, 1999]. L'absorption de H_2O et de HNO_3 environnant par les PSC et la sédimentation de ces nuages qui s'en suit sont les principaux facteurs de la dénitrification et de la déshydratation de la stratosphère hivernale, qui contribuent à augmenter la déplétion d'ozone [WMO, 2018].

Malgré des améliorations majeures au cours des dernières années grâce à l'amélioration des capacités de recherche et de surveillance, certains aspects des PSC restent encore à comprendre. Les mesures spatiales ont apporté un point de vue global capable de saisir la distribution spatiale et temporelle des PSC en hiver [Pitts et al., 2018]. Des études ont souligné la nécessité de prendre en compte les variations de température induites par l'activité ondulatoire pour modéliser de manière adéquate les occurrences de PSC [Cairo et al., 2004, Höpfner et al., 2006, Eckermann et al., 2006, Engel et al., 2013, Tritscher et al., 2019]. Cependant, certains chemins de formation des particules de PSC sont encore débattus [Tritscher et al., 2021] et la paramétrisation adéquate des PSC dans les modèles climatiques reste un défi. En outre, les récentes injections stratosphériques d'aérosols causées par des éruptions volcaniques et des feux de forêt soulèvent également de nouvelles problématiques autour de l'interaction potentielle de ces aérosols avec les processus de formation de PSC et des pertes additionnelles en l'ozone stratosphérique qui pourraient suivre [Tencé et al., 2022, Ansmann et al., 2022, Rieger et al., 2021, Stone et al., 2021].

Selon la pression, la température, les concentrations de H_2O et HNO_3 en phase gazeuse et potentiellement l'abondance de noyaux de nucléation disponibles, les trois espèces clés se combinent et forment différents types de particules et de nuages. Les noyaux de nucléation sont généralement des aérosols stratosphériques soufrés et plus marginalement des particules d'origine météoritique, dont le rôle dans la nucléation des particules de PSC est encore débattu [Ebert et al., 2016, James et al., 2018]. Comme cela a été abordé en section 1.2.4, les trois particules de base de la composition des PSC que sont les cristaux de glace d'eau (ICE), d'acide nitrique trihydraté (NAT) et les gouttelettes de solution ternaire sursaturée (STS) ont été pleinement caractérisées en laboratoire [Koop et al., 2000, Hanson and Mauersberger, 1988b, Carslaw et al., 1997]. Les mécanismes de formation de ces trois espèces sont décrits en section 1.2.4. Parmi ces trois espèces, les cristaux de glace sont les plus efficaces pour

activer les espèces chlorées. Toutefois ces cristaux sont relativement rares et la majorité de l'activation du chlore se produit par des réactions à la surface ou au sein de particules liquides [Abbatt and Molina, 1992, Hanson and Ravishankara, 1993, Wegner et al., 2012, Tritscher et al., 2021]. Les efficacités des particules de STS, NAT et ICE à activer les espèces chlorées sont comparées en fonction de la température par la figure 39 de [Tritscher et al., 2021].

À partir de ces trois types de particules et de leurs combinaisons possibles, différents types de PSC ont été identifiés afin d'établir des classifications basées sur les propriétés optiques des composés chimiques purs de STS, NAT et ICE. La première classification de ce genre a été publiée par [Poole et al., 1988] en 1988. De nombreux schémas de classification ont été proposés depuis, incluant différents types de nuages et s'appuyant sur différentes variables [Browell et al., 1990, Toon et al., 1990, Stein et al., 1999, Santacesaria et al., 2001, Adriani et al., 2004, Massoli et al., 2006, Blum et al., 2005, Pitts et al., 2009, 2011, 2013, 2018]. Au fil du temps, ces schémas se sont complexifiés car les trois types de PSC composés uniquement de STS, NAT ou ICE ne pouvaient pas expliquer à eux seuls l'étendue des observations de PSC et cela aboutissait à une grande proportion de mesures non classifiées (jusqu'à 30%, [Achtert and Tesche 2014]). De plus, certaines classifications incluait initialement des espèces formées lors d'études en laboratoire mais thermodynamiquement instables aux conditions stratosphériques, comme l'acide sulfurique tétrahydraté (SAT) ou encore l'acide nitrique dihydraté (NAD). L'existence de SAT ou de NAD au sein de PSC n'a pas été confirmée par des mesures atmosphériques. Des études ont montré que l'identification des types de PSC nécessite de connaître l'historique des masses d'air en raison des effets d'hystérésis qui caractérisent la formation des particules de PSC le long de l'échelle de température [Larsen, 2000], comme cela a été abordé en section 1.2.4. Enfin, le taux de refroidissement est une variable importante gouvernant la formation de certains PSC par orographie en Arctique et en Antarctique [Noel and Pitts, 2012].

Globalement, les modèles climatiques globaux n'ont pas pu tirer pleinement avantage des classifications de PSC car la plupart des modèles ne disposent que d'un nombre réduit de variables pour paramétrer la microphysique des PSC. Par conséquent, la combinaison des contraintes propres aux modèles et du taux élevé d'observations non classées (en raison de problèmes instrumentaux ou de particules hors équilibre) a conduit à redéfinir les limites entre les classes PSC existantes plutôt qu'à introduire des classes supplémentaires. Les classifications de PSC mentionnées précédemment sont basées sur des mesures lidar sol ou spatiales. Bien que les mesures in-situ soient de grande qualité et recherchées, elles restent marginales en raison des contraintes logistiques. Les instruments lidar, qu'ils soient basés au sol ou spatiaux, sont adaptés à l'étude des PSC car ils fournissent des données de haute résolution verticale et temporelle. Cependant, à l'inverse des compteurs de particules directs, la restitution des propriétés optiques à partir des mesures lidar implique de lourdes procédures d'inversion détaillées en section 2.1.4.

[Achtert and Tesche 2014] ont présenté une comparaison des classifications de PSC publiées dans la littérature. Leur étude montre que ces schémas peuvent mener à des résultats très variés lorsqu'appliqués à un même jeu de

données. D'après [Achtert and Tesche \[2014\]](#), une explication pourrait être que ces classifications sont pour la plupart construites à partir des données d'un seul instrument et peuvent incorporer les biais instrumentaux qui leur sont propres, empêchant de fait des comparaisons concluantes entre différents schémas. Aussi, différentes variables ont été utilisées pour classer les observations de PSC et le manque d'homogénéité dans le traitement des mesures lidar et dans la définition des variables exploitées complique encore les comparaisons. À partir des conclusions de [Achtert and Tesche \[2014\]](#), nous avons décidé de considérer ici trois classifications proposées par [Blum et al. \[2005\]](#) (ci-après B05), [Pitts et al. \[2011\]](#) (ci-après P11) et une version mise à jour de P11 publiée en 2018 : [Pitts et al. \[2018\]](#) (ci-après P18).

Ces classifications sont utilisées pour analyser les mesures lidar acquises à la station française DDU, qui a été présentée en section [2.1.2](#). Les mesures de PSC de DDU sont comparées aux mesures spatiales effectuées par CALIOP (Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization) à proximité de la station, de 2007 à 2020. Deux des principaux rôles d'une station au sol sont d'effectuer des études de processus et d'établir des tendances décennales. Ces tendances sont très précieuses car elles reflètent l'évolution de la stratosphère, en termes de température et de composition chimique. Dans cette étude, les mesures lidar de DDU sont exploitées pour produire une tendance des jours PSC par an à DDU.

Les données utilisées dans cette étude, le lidar de DDU, ainsi que les méthodes d'inversion appliquées aux mesures de ce lidar ont été introduites en sections [2.2](#), [2.1.2](#) et [2.1.4](#) respectivement. La section 2 introduit les méthodes de détection des PSC ainsi que les schémas de classification considérés. La section 3 expose les résultats de l'étude. Tout d'abord, les résultats de l'application des schémas de classification B05, P11 et P18 aux données lidar de DDU sont présentés et discutés, et ces données sont comparées aux mesures de PSC de CALIOP. Puis, un cas d'étude d'une longue session de mesures de PSC à DDU est mis en avant afin d'illustrer les capacités uniques d'un lidar sol pour la caractérisation de la fine structure verticale des champs de PSC. Troisièmement, les mesures lidar et les températures de ERA5, NCEP et de IASI (Interféromètres de Sondage Atmosphérique Infrarouge) sont combinées pour produire une tendance des occurrences de PSC à DDU de 2007 à 2020. Pour appuyer l'utilisation de ces sources de données de température, elles sont comparées aux températures des radiosondes lancées quotidiennement à DDU. Enfin, certains défis de la paramétrisation des PSC dans les modèles climatiques sont discutés avant d'exposer les principales conclusions.

3.2 Traitement des mesures et classifications

3.2.1 Détection de PSC par mesures lidar

Au delà des procédures d'inversion décrites en section [2.1.4](#), le pré-traitement optimisant le choix du temps d'intégration est capital pour l'étude des PSC afin de minimiser le lissage spatio-temporel induit par l'intégration

temporelle. Cela permet de restituer des propriétés optiques correspondant au mieux à la réalité du nuage sondé.

Une fois que l'inversion a permis de restituer les profils de rapport de rétrodiffusion et de dépolarisation, un algorithme de détection de pics est appliqué sur ces deux profils pour identifier les potentielles couches diffusantes. Les résultats sont combinés afin de produire une liste de pics et de couches associées. Pour chaque couche, les paramètres pertinents pour les classifications étudiées ici sont calculés ($[R_{532}, R_{532, //}]$, $[R_{532, \perp}, R_{532, //}]$ et $[R_{532}, \beta_{532, \text{tot}, \perp}]$) et sont utilisés pour attribuer un type (cirrus, aérosol, ou un des types de PSC) à chaque intervalle d'altitude (ou bin) composant la couche. Enfin, les couches qui sont séparées par moins de 300 m sont fusionnées, ce qui est cohérent compte tenu de la réalité climatologique des champs de PSC observés et de la résolution verticale de 60 m du lidar de DDU. Pour chaque profil, jusqu'à cinq couches stratosphériques sont identifiées et triées selon leurs valeurs de R_{532} et δ_{532} . Les variables utilisées dans cette étude ont été définies en section [2.1.3](#).

3.2.2 Détection de PSC par CALIOP

Les mesures de CALIOP sont comparées aux mesures lidar sol acquises à DDU. La méthode utilisée pour cette comparaison est inspirée de [Snels et al. \[2021\]](#). Le produit "PSC Mask v2" fourni par CALIOP trie les détections de PSC selon le schéma P18. Ce produit est extrait dans une zone de 100 km de rayon autour de DDU, de 2007 à 2020 et de juin à septembre. Pour chaque orbite compris dans cette zone, le profil le plus proche de la station est conservé pour permettre une représentation égale de chaque trace orbitale passant près de la station.

Le produit "PSC Mask v2" a une résolution verticale de 180 m. La méthode de détection de PSC utilisée par CALIOP est décrite exhaustivement dans [Pitts et al. \[2018\]](#). Nous ne rappelons ici que quelques spécificités de cette méthode qui sont importantes pour notre étude. Pour éviter les erreurs de détection causées par le bruit du signal, CALIOP applique un critère de cohérence qui ne trie un bin vertical comme PSC que si "plus de 11 des points compris dans une boîte de 5 points horizontaux par 3 points verticaux centrée sur le bin candidat dépassent le seuil de détection PSC ou si le bin candidat a été identifié comme PSC à une échelle de moyennage plus fine" [Pitts et al., \[2018\]](#). Pour imiter ce critère pour un lidar sol, [Snels et al. \[2021\]](#) impose qu'au moins cinq bins consécutifs soient considérés comme PSC pour classer un candidat comme PSC. De plus, pour être en accord avec la méthode utilisée par [Snels et al. \[2021\]](#), nous ne considérons que les bins compris entre 12 et 26 km.

Il convient de mentionner une différence majeure entre la méthode de détection de PSC de CALIOP et notre méthode. CALIOP classe chaque bin vertical séparément, alors que nous ne classons que les couches qui ont été sélectionnées par un algorithme de détection de pics appliqué à R_{532} et δ_{532} . Malgré le critère de cohérence de CALIOP et le seuil dynamique dépendant du bruit, nous considérons que la classification de chaque bin vertical est trop sensible aux erreurs d'inversion, en particulier dans le cas d'un lidar sol qui ne dispose pas de dimension horizontale à prendre en compte. De plus, une telle méthode permet l'attribution de différents types de PSC d'un bin de 180 m à un autre. Compte tenu de la résolution verticale de CALIOP et de l'échelle des couches de PSC,

l'attribution d'un type A puis B puis A à trois bins consécutifs ne nous semble pas réaliste. Bien que les méthodes de détection PSC soient différentes, toutes deux incluent une pondération par l'épaisseur des couches classées, la comparaison est donc valable.

3.2.3 Schémas de classification

Comme cela a été mentionné en introduction, l'établissement de classifications de PSC est délicat. Cela est toutefois important car ces classes sont directement traduites en terme d'efficacité chimique dans les mécanismes de déplétion d'ozone au sein des modèles climatiques. Relier des seuils thermodynamiques et microphysiques à des seuils optiques est complexe. Les classifications publiées dans la littérature incluent pour la plupart des seuils de paramètres optiques basés sur des calculs microphysiques. L'objectif de cette section est notamment de fournir à la communauté une distribution de PSC dont la cohérence a été vérifiée en utilisant différents paramètres et seuils d'observation. L'application de différents schémas de classification met en évidence la variabilité et, par conséquent, la cohérence de notre distribution. Comme précisé en introduction, les classifications B05 et P11 sont considérées ici en suivant les conclusions de [Achtert and Tesche \[2014\]](#), à laquelle nous avons ajouté P18, la mise à jour de P11 publiée en 2018. Appliquer les mesures locales de DDU à ces classifications permet d'une part d'obtenir la distribution des types de PSC observés à la station, mais aussi d'illustrer les spécificités propres à chaque classification. La localisation particulière de DDU (voir section [2.1.2](#)) implique que la zoologie de PSC observée à la station n'est pas nécessairement représentative de l'ensemble du vortex polaire.

B05 est donc basée sur les mesures du lidar sol situé à la station Esrange en Suède acquises entre 1997 et 2004. B05 s'appuie sur les variables $R_{532, //}$, $R_{532, \perp}$ et $\delta_{532, aer}$, cette dernière étant liée aux deux premières par l'équation [\(2.4\)](#). Le seuil séparant les couches de PSC des aérosols de fond dans B05 est $R_{//, thresh} = 1.06$. Cette classification attribue aux mesures de PSC les types NAT, STS, ICE et MIX, ce dernier étant une catégorie mixte, comme son nom l'indique. Leurs propriétés sont les suivantes. Les nuages de NAT sont composés de cristaux non sphériques et présentent donc une forte dépolarisation ($\delta_{532, aer} > 10\%$) et un rapport de rétrodiffusion parallèle faible ($R_{532, //} < 2$). Les PSC de STS sont composés de gouttelettes qui sont donc liquides et sphériques : ils sont par conséquent caractérisés par une dépolarisation théoriquement nulle et des valeurs de rapport de rétrodiffusion parallèle modérées ($R_{532, //} < 5$). Les PSC ICE sont associés à des valeurs de dépolarisation importantes, significativement supérieures à 2%, et des rapports de rétrodiffusion compris entre 2 et 7, ou simplement $R_{532} > 7$. La catégorie MIX est définie comme comprenant toute mesure n'appartenant à aucune des trois autres classes. Les types et seuils de B05 sont résumés en figure [3.1a](#).

P11 est basé sur les mesures du satellite CALIOP. Ce schéma repose sur les variables R_{532} et $\delta_{532, aer}$. Bien que P11 utilise ces deux variables pour trier les types de PSC, il faut mentionner que le couple de variables servant à la détection des couches de PSC à partir des mesures lidar est $[R_{532}, \beta_{532, tot, \perp}]$. P11 liste cinq types de PSC : STS,

ICE, NAT-Mix1 (MIX1), NAT-Mix2 (MIX2) et Mixed-enhanced (ENH). Les particules de ENH sont généralement liées à l'orographie et ne sont donc pas attendues à DDU [Tsias et al., 1999]. STS et ICE ont ici les mêmes définitions que pour B05, bien que les variables et les seuils correspondant soient différents. En revanche, la catégorie MIX de B05 a une définition bien différente que les catégories mixtes de P11. La distinction entre MIX1 et MIX2 est définie en détails par [Pitts et al., 2009] et émane de simulations optiques. La limite entre MIX1 et MIX2 trie les PSC en fonction de leur densité ou leur volume de particules de NAT : MIX1 correspond aux nuages présentant de faibles densités ou de faibles volumes de cristaux de NAT, et MIX2 correspond à l'inverse à des nuages avec de fortes densités ou volumes de cristaux de NAT. Les types et seuils de P11 sont résumés en figure 3.1b. Les valeurs de deux seuils ne sont pas précisées sur la figure 3.1b : le seuil de $\delta_{532,aer}$ entre les ICE et les STS qui est une limite décroissante linéairement de $\delta_{532,aer,STS} = 0.7\%$ à 0% à mesure que R_{532} augmente, et le seuil séparant MIX1 et MIX2 mentionné précédemment et détaillé dans [Pitts et al., 2009].

Les mesures d'un lidar spatial sont caractérisées par un SNR plus faible par rapport à celles d'un lidar sol. Cela est contrebalancé par l'importante quantité de profils mesurés, une fois de plus par rapport à un instrument équivalent basé au sol. Le moyennage horizontal et de très courts temps d'intégration contribuent également au faible SNR des mesures spatiales. C'est pourquoi, en accord avec les conclusions de [Achtert and Tesche 2014], certaines valeurs de seuils de P11 doivent être adaptées pour être appliquées à des mesures sol. Les valeurs modifiées sont indiquées sur la figure 3.1b. Le seuil de R_{532} délimitant les aérosols de fond des couches de PSC est abaissé de 1,25 à 1,1. Bien que [Achtert and Tesche 2014] préconisent l'usage de $\delta_{532,aer,STS} = 0,4\%$ pour la limite supérieure de dépolarisation des STS, nous l'avons fixé à $\delta_{532,aer,STS} = 0,7\%$ afin d'être cohérent avec B05, puisqu'il s'agit dans les deux cas d'instruments sol. Initialement, P11 fixe ce seuil à une valeur de $\delta_{532,aer,STS} = 3,5\%$.

P18 est également basé sur CALIOP et est une mise à jour de P11. P18 s'appuie aussi sur R_{532} mais considère maintenant $\beta_{532,tot,\perp}$ en lieu et place de $\delta_{532,aer}$. Pour rappel, P11 utilisait déjà cette variable pour la détection des couches. P18 inclut toujours les types STS, ICE et ENH, mais les types MIX1 et MIX2 de P11 ont été regroupés en une unique catégorie, nommé NAT-mixtures (NATmix). La principale évolution entre P11 et P18 consiste en l'apparition de seuils dynamiques. Certains seuils dépendent des incertitudes sur les mesures ou encore des abondances relatives de composants atmosphériques comme H_2O ou HNO_3 . De tels seuils dynamiques sont adaptés à un lidar spatial car celui-ci évolue dans des conditions atmosphériques très variables. Les trois seuils dynamiques sont $R_{532,thresh}$, $\beta_{532,tot,\perp,STS}$ et $R_{532,ICE}$. Les types et seuils de P18 sont résumés en figure 3.1c.

Pour P18, les incertitudes sur les mesures sont calculées à partir de méthodes conçues pour CALIOP [Liu et al., 2006, Hostetler et al., 2006]. En adaptant P18 pour les mesures du lidar de DDU, nous avons simplifié les seuils dynamiques : $R_{532,thresh}$, la limite de R_{532} séparant les aérosols de fond des couches de PSC a été défini à $R_{532,thresh} = 1,1$ comme pour P11, suivant les recommandations de [Achtert and Tesche 2014]. Le seuil $\beta_{532,tot,\perp,STS}$ séparant les aérosols et gouttelettes de STS des cristaux de NAT ou de ICE a été fixé, mais varie avec l'altitude. Le profil de $\beta_{532,tot,\perp,thresh}$ est défini comme la moyenne plus un écart-type de toutes les valeurs

correspondant à des mesures d'aérosols ou de STS par intervalle de 1 km. Pour cela, les classifications de B05 et P11 ont été utilisées. Le profil de $\beta_{532,tot,\perp,STS}$, non montré ici, affiche une forte dépendance verticale : sur le domaine stratosphérique d'occurrence des PSC, ce seuil varie de deux ordres de grandeur. Cette dépendance justifie le calcul de ce seuil en fonction de l'altitude.

Dans P18, la valeur de $R_{532,ICE}$ séparant les mélanges de NAT et les ENH des ICE est calculée à partir des mesures quasi coïncidentes de concentrations de H_2O et HNO_3 de MLS, puisque les satellites Aura et CALIPSO sont tous deux à bord de la constellation de satellites A-train. À partir des abondances de H_2O et HNO_3 , les simulations théoriques de R_{532} mènent à un seuil dynamique de $R_{532,ICE}$. Le changement de $R_{532,ICE}$ entre P11 et P18 est significatif : ce seuil passe de $R_{532,ICE} = 5$ dans P11 à $R_{532,ICE}$ entre 2,75 et 4 selon les conditions. Un tel changement a des conséquences directes sur les résultats des classifications. Nous avons fait le choix d'utiliser les valeurs de seuil $R_{532,ICE}$ calculées par les équipes de CALIOP à partir des mesures de MLS et inclus dans le produit "PSC Mask v2", et pour chaque jour nous prenons le seuil fourni par l'orbite temporellement la plus proche, dans un rayon de 100 km autour de DDU.

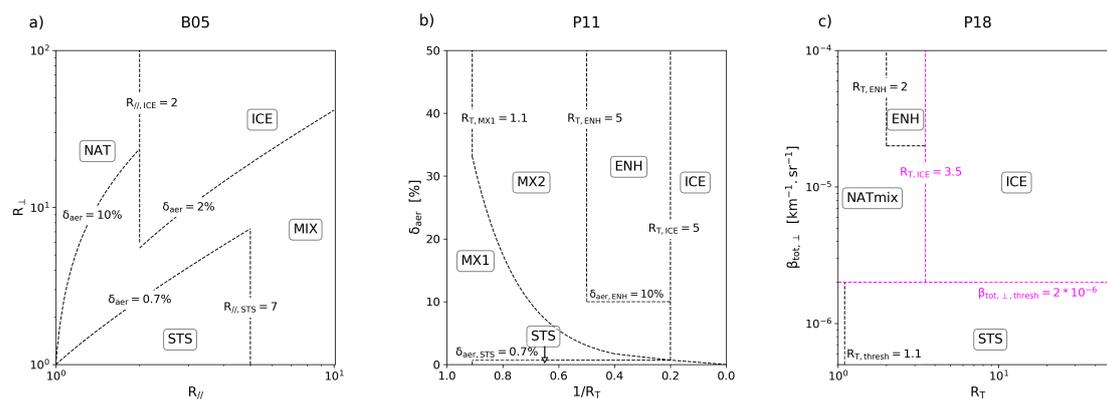


FIGURE 3.1 – Cadre des trois classifications considérées dans cette étude : B05 (a), P11 (b) et P18 (c). Les seuils correspondant sont indiqués. Les seuils variables sont représentés par des droites colorées pour les mettre en évidence, les valeurs ne sont indiquées ici que pour fournir un ordre de grandeur.

La catégorie "wave ICE" ($R_{532} > 50$) de P11 et P18, qui désigne des PSC ICE formés grâce à des ondes de gravité orographiques, a été ignorée à DDU. En effet, de tels PSC ne sont pas attendus à DDU en raison de la localisation de la station.

La plupart des classifications publiées incluent une catégorie mixte. Les nuages mixtes recouvrent différentes réalités physiques selon la définition qui en est faite, et il convient de ne pas les confondre. Une couche nuageuse mixte peut être un empilement de fines couches de compositions chimiques différentes (plus fines que la résolution de l'instrument ou de l'algorithme de classification), mais peut également correspondre à une signature optique de particules hors d'équilibre thermodynamique évoluant avec la température. La géométrie de la mesure lidar est telle que seule une fine colonne au dessus de l'instrument est sondée et ainsi une forte variabilité est attendue aux

altitudes stratosphériques compte tenu de la vitesse de transport des masses d'air à ces altitudes et des temps d'équilibre des populations de particules de PSC. De telles particules hors équilibre doivent être classées et il est attendu qu'elles représentent une part non négligeable des observations, peu importe le schéma considéré.

Enfin, les mesures de PSC acquises à DDU sont comparées à celles réalisées par CALIOP dans un domaine autour de la station française. La méthode employée pour comparer les mesures de CALIOP à un lidar sol est très proche de celle décrite par [Snels et al. \[2021\]](#). Pour cela, le produit de niveau 2 "PSC Mask v2" fourni par CALIOP classifiant les observations du satellite en types de PSC selon P18 est utilisé. De manière similaire à [Snels et al. \[2021\]](#), les mesures de PSC réalisées entre juin et septembre dans un rayon de 100 km autour de DDU sont considérées. Sur chacune de ces orbites, la mesure la plus proche de la station en distance est conservée. Cela permet de représenter avec un poids égal les différentes orbites de CALIOP passant dans la zone autour de DDU.

Le produit de CALIOP a une résolution verticale de 180 m. Pour éviter les erreurs de détection dues à des pics isolés du signal, CALIOP impose un critère de cohérence pour la détection d'un PSC que nous reproduisons ici : si les couches de PSC identifiées ont une épaisseur géométrique inférieure à 5 points c'est-à-dire à 900 m, elles ne sont pas prises en compte. Enfin, pour reproduire la méthode de CALIOP et de [Snels et al. \[2021\]](#), seules les altitudes comprises entre 12 et 26 km sont considérées.

Une différence majeure entre la méthode de détection de PSC par CALIOP et [Snels et al. \[2021\]](#) et celle que nous utilisons à DDU doit être notée. CALIOP et [Snels et al. \[2021\]](#) comptent les PSC par bins de 180 m, avec un critère de cohérence de 5 points, alors que nous ne comptons que les couches identifiées comme cohérentes par notre méthode de détection de pics sur les profils de R_{532} et δ_{532} . Nous considérons que réaliser l'analyse bin à bin rend la détection trop sensible aux problèmes d'inversion. Par ailleurs, cela entraîne l'identification de nuages dont le type varie d'un bin de 180 m à l'autre, ce qui ne nous semble pas réaliste. Si la méthode d'identification des PSC est différente, les deux méthodes incluent une pondération par l'épaisseur géométrique des nuages détectés et la comparaison est valide.

3.3 Résultats

3.3.1 Classifications à deux variables

Avant de discuter les distributions de types de PSC à DDU données par les schémas de classification B05, P11 et P18, nous fournissons quelques statistiques sur les détections de PSC par CALIOP autour de DDU au moyen de la méthode décrite dans la section précédente et inspirée de [Snels et al. \[2021\]](#). La station Concordia, sujet de l'étude de [Snels et al. \[2021\]](#), est située à plus de 1000 km à l'intérieur du continent antarctique, alors que DDU a une position littorale et se situe souvent en bordure de vortex. En conséquence, les observations de PSC à DDU sont plus rares qu'à Concordia. En prenant une distance d'environ 100 km autour de Concordia, de 2014 à 2018 et

de juin à septembre, [Snels et al. \[2021\]](#) trouve 369 orbites de CALIOP disponibles, dont 88 ne comprennent aucun PSC. Sur la période de 2007 à 2020, en prenant les mêmes critères, seules 392 orbites sont identifiées autour de DDU, dont 299 ne comprennent aucun PSC. Cela souligne tout d'abord le faible nombre d'orbites de CALIOP disponibles dans le domaine autour de DDU, comme cela est également souligné par [Tesche et al. \[2021\]](#), Figure 8]. Parmi ces orbites, la proportion de PSC est aussi significativement plus faible à DDU qu'à Concordia. Cela est illustré par [Tesche et al. \[2021\]](#), Figure 7] qui, en s'appuyant sur les hivers 2012 et 2015 en Antarctique, identifie 74115 bins verticaux dans un domaine de $4^\circ \times 4^\circ$ autour de Concordia, et seulement 7056 autour de DDU. Cela rappelle la position marginale de DDU par rapport au vortex polaire et souligne la difficulté à comparer les mesures qui y sont acquises à celles de CALIOP en raison du faible nombre de mesures compatibles.

Les distributions de types de PSC résultant de l'application des mesures de PSC de DDU aux schémas de B05, P11 et P18 sont présentées en figure [3.2](#). La distribution de types de PSC à DDU basée sur les mesures de CALIOP et utilisant P18 est également fournie en figure [3.2d](#). Afin de permettre la comparaison avec CALIOP, seules les mesures lidar acquises à DDU de juin à septembre inclus sont prises en compte ici. La figure [3.2](#) montre globalement un bon accord entre les différents schémas étudiés. Tout d'abord, les abondances de STS sont remarquablement stables selon les classifications : entre 27.4% et 35.4%. Afin de comparer les proportions de NAT et de mélanges de NAT de chaque schéma, on somme les abondances de NAT et de nuages mixtes de chaque classification puisqu'il faut tenir compte des différences de types entre les modèles pour pouvoir les comparer pertinemment. Pour B05, les types NAT+MIX représentent 64.4%. Pour P11, MIX1+MIX2+ENH pèsent 70.7% de la totalité des mesures. Pour les deux jeux de données utilisant P18, NATmix+ENH totalisent 61% et 62.1% des mesures basées sur le lidar de DDU et CALIOP respectivement. Ces différences sont le reflet des écarts de définition et donc de proportion de la catégorie ICE entre les différentes classifications.

Le type ICE est celui dont l'abondance présente la plus forte variabilité entre les différents diagrammes de la figure [3.2](#). La première explication à cette variabilité réside dans les seuils utilisés par les différents schémas : comme cela a été mis en évidence précédemment, l'évolution de $R_{532,ICE}$ de P11 à P18 est significative et se traduit par un écart important entre la proportion de ICE de ces deux classifications. B05 classe un PSC en ICE si $\delta_{532,aer} > 2\%$ et $2 < R_{532, //} < 7$, ou si $R_{532} > 7$. Par ailleurs, R_{532} peut s'exprimer $\frac{R_{532, //} + R_{532, \perp} * \delta_{mol}}{1 + \delta_{mol}}$ et comme $\delta_{mol} = 0.00443$, on peut conclure que R_{532} est dominé par $R_{532, //}$. Par conséquent, la définition de la catégorie ICE de B05 est plus permissive que celle de P11 et que celle de P18 dans une moindre mesure : certains PSC sont classés parmi les ICE par B05, alors qu'ils sont considérés comme des NAT par P11 et P18, ce qui est cohérent avec les différences observées en figure [3.2](#).

La distribution de types de PSC produite à partir des mesures de CALIOP et du schéma P18 pour DDU aboutit à une proportion de 9.9% de ICE. La remarque précédente sur le seuil $R_{532,ICE}$ de P18 est toujours pertinente ici. Cependant, la proportion de ICE de la figure [3.2d](#) est largement supérieure à celle de la figure [3.2b](#), pourtant également basée sur P18. Cet écart vient certainement des différents points de vue du lidar de DDU et de CALIOP

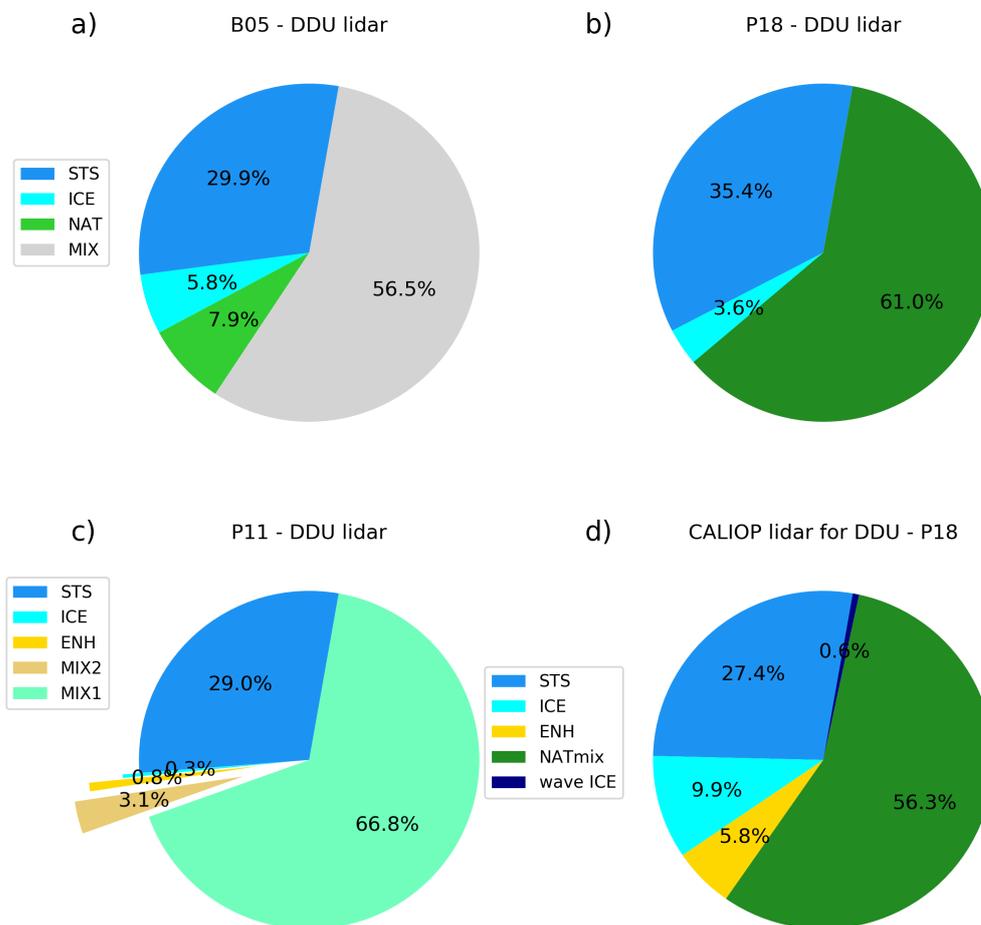


FIGURE 3.2 – Distribution des types de PSC mesurés à DDU pour les trois classifications étudiées : B05 (a), P18 (b), P11 (c) et mesurés par CALIOP au dessus de DDU et triés par P18 (d).

ainsi que des contraintes opérationnelles de ces deux instruments. CALIOP a directement accès à la stratosphère étant un lidar spatial, alors que le lidar sol doit traverser la troposphère avant de l'atteindre. Pour la sécurité du lidar de DDU, aucune mesure n'est réalisée en cas de forte couverture nuageuse troposphérique. Par ailleurs, des études en Arctique et Antarctique suggèrent une corrélation entre la présence de nuages en troposphère et l'occurrence de PSC ICE [Achtert et al., 2012, Adhikari et al., 2010]. On pense que la présence de nuages troposphériques épais contribue à atteindre des températures suffisamment basses pour permettre la formation de tels PSC en stratosphère. Ce raisonnement expliquerait les observations significativement plus faibles de ICE depuis DDU par rapport à CALIOP. Entre 2007 et 2020, CALIOP a identifié des PSC ICE dans la zone de DDU en 19 jours distincts.

Parmi ces 19 jours, le lidar de DDU n'a pu être opéré que 4 fois, ce qui suggère que les conditions météorologiques empêchaient la mesure lidar sol. Nous considérons cependant que cet échantillon est trop limité pour établir des statistiques fiables. Néanmoins, on s'attend à ce que les observations de ICE à DDU restent marginales comme la station est généralement située en bord de vortex et loin d'activité ondulatoire orographique, ce qui laisse penser que les 9,9% de la figure 3.2d pourraient être surestimés. Une abondance faible de ICE à DDU est supportée par Pitts et al. [2018].

À la station McMurdo (77.85°S - 166.66°E), de 2006 à 2010, Snels et al. [2019] reportent 13.8% de STS, 71.6% de NATmix, 2.6% de ENH et 12% de ICE. Sur la période, CALIOP observe environ 10% de STS en plus et 10% de NATmix en moins et montre par ailleurs un relativement bon accord avec le lidar sol. Snels et al. [2021] comparent les mesures sol réalisées à la station Concordia aux mesures de CALIOP de 2014 à 2018. Cette étude se concentre surtout sur la concordance entre sol et spatial et ne donne pas directement la distribution de types de PSC observés à Concordia mais fournit tout de même la distribution de types détectés par CALIOP autour de la station. Selon les années de 2014 à 2018, les occurrences de STS représentent de 14 à 38%, NATmix de 42 à 67%, ENH et 5 à 11% et ICE de 10 à 28%. La distribution présente une importante variabilité interannuelle, mais on remarque tout de même une différence avec les mesures de DDU. Dans le cas de McMurdo comme de Concordia, les observations de ICE occupent une place plus importante qu'à DDU et à l'inverse les STS y sont moins fréquemment détectés. Cela est cohérent avec les résultats de Pitts et al. [2018, Figure 19] qui montrent que le domaine principal d'occurrence des ICE est situé plus à l'intérieur du continent antarctique qu'à la position de DDU. Les températures nécessaires à la formation des cristaux de glace sont moins souvent atteintes à DDU, souvent située en bordure de vortex.

La distribution des mesures de PSC à DDU selon les classifications B05, P11 et P18 est proposée en figure 3.3 et indique la manière dont se répartissent les mesures sur les plans des différents schémas. Cela fournit un autre point de vue sur la pertinence des différents seuils. Sur les figures 3.3a et b, il est remarquable d'observer un pic des observations légèrement sous la limite de dépolarisation des STS. Sur la figure 3.3a, il apparaît que la majorité des mesures sont classées comme MIX. Cela est cohérent avec la figure 5b de Achtert and Tesche [2014], qui montre également une forte densité d'observation dans la catégorie MIX. Compte tenu du seuil de dépolarisation de 10% et du nombre relativement faible de NAT identifié par B05, nous considérons que B05 ne classifie comme NAT que les PSC qui sont uniquement composés ou largement dominés par des particules de NAT. De leurs côtés, P11 et P18 classifient les mélanges de NAT en MIX1, MIX2 et NATmix qui sont susceptibles d'incorporer une part significative de gouttelettes de STS.

Quant aux nuages ICE, B05 en compte significativement plus que P18 et surtout que P11, où ils restent marginaux. Le nombre d'observations de ICE relativement faible que nous comptabilisons doit être mis en rapport avec le fait que les champs de ICE sont plus instables aux latitudes de DDU qu'à plus hautes latitudes, au coeur du vortex. Les propriétés optiques de ces nuages présentent donc des valeurs plus proches des seuils délimitant la catégorie

ICE et mènent ainsi à une plus grande variabilité entre les schémas. À titre d'exemple, un PSC a été détecté à DDU le 11/07/2011 avec une dépolarisation de 3.6% un rapport de rétrodiffusion total de 2.3 ($R_{532, //} = 2.034$ et $R_{532, \perp} = 9.43$). Cette observation est classée comme ICE par B05, mais comme MIX1 par P11 et comme NATmix par P18. Enfin, à partir des figures 3.3p et c, nous concluons que la catégorie ENH est marginale à DDU puisqu'elle n'est quasiment jamais détectée, ce qui est attendu au vu de l'absence d'activité ondulatoire orographique à DDU. Toutefois, CALIOP classe 7.1% des détections de PSC à DDU comme ENH. Cela est vraisemblablement dû à des valeurs de $\beta_{532, \text{tot}, \perp}$ supérieures à celles mesurées avec le lidar de DDU, comme le montre la figure 3.3c, mais nous n'expliquons pas cette différence.

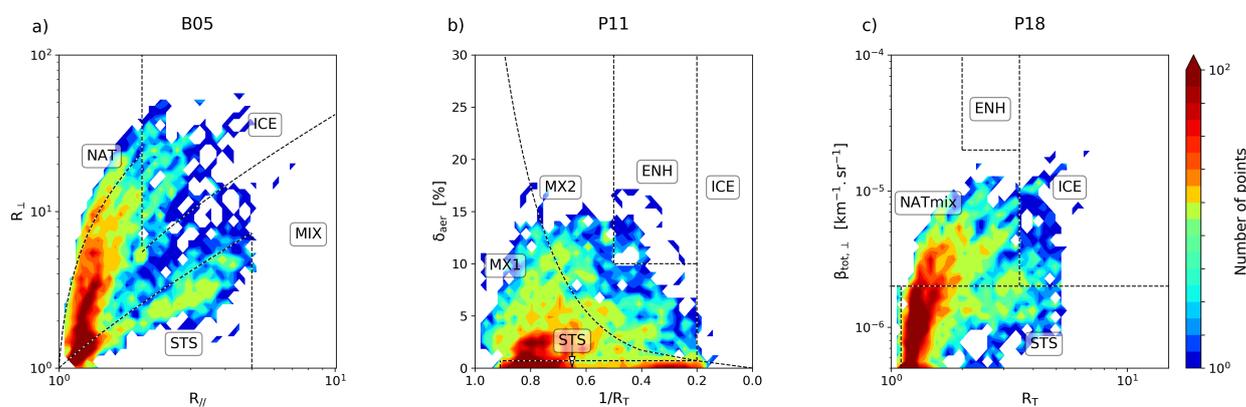


FIGURE 3.3 – Distributions des mesures de PSC acquises à DDU de 2007 à 2020 selon les trois schémas de classification : B05 (a), P11 (b) et P18 (c). La couleur représente le nombre de points par pixel et chaque graphe est basé sur une grille de 50x50 pixels.

Les distributions des couches de PSC identifiées en fonction de la température et de l'altitude ont été compilées pour B05, P11 et P18 pour les STS, NAT+mix et ICE. La catégorie NAT+mix regroupe tous les types relatifs aux NAT et aux nuages mixtes, c'est-à-dire NAT+MIX pour B05, MIX1+MIX2+ENH pour P11 et NATmix pour P18, puisqu'il s'agit du meilleur moyen de comparer les résultats de B05, P11 et P18. Les distributions ont été calculées en utilisant une estimation par noyau (*kernel density estimation*, en anglais), aussi connue sous le nom de la méthode de Parzen-Rosenblatt, une méthode non paramétrique servant à estimer la fonction de densité de probabilité d'un échantillon donné [Rosenblatt, 1956, Parzen, 1962]. Les distributions pour chaque schéma de classification et pour chaque type de PSC sont exposées en figure 3.4

Pour chaque mesure de PSC, les concentrations de H_2O et HNO_3 mesurées par MLS sont utilisées pour calculer les seuils de températures pertinents : T_{NAT} , T_{STS} ou T_{ICE} , présentées en section 1.2.4. La figure 3.4 présente la distribution des mesures de PSC en fonction de l'altitude et de l'écart de la température au seuil de formation correspondant au type de PSC identifié.

La température n'est pas une variable dans la méthode de détection de PSC, et pourtant nous observons que

la plupart des mesures de NAT+mix se situent sous le seuil T_{NAT} , d'autant plus en tenant compte des incertitudes associées aux mesures de MLS et aux données de température de ERA5. Les observations de STS se situent quant à elles en grande partie au dessus du seuil de température associé. Cela s'explique en partie par le fait que T_{STS} n'est pas un seuil associé à une transition de phase discrète comme c'est le cas pour T_{NAT} et T_{ICE} mais à une évolution continue de la composition chimique au sein des gouttelettes. Enfin, la figure 3.4 illustre de nouveau que la différence principale entre les classifications réside dans la catégorie ICE : les distributions des figures 3.4g, h et i présentent des formes très variées. Il est toutefois important d'interpréter ces distributions avec précaution puisque dans le cas des ICE, les distributions sont calculées à partir d'un nombre relativement réduit de points. Il apparaît cependant que P11 classifie peu de PSC en ICE mais ceux-ci sont dans le domaine attendu de température, alors que la plupart des ICE identifiés par B05 et P18 sont au dessus du seuil T_{ICE} .

La figure 3.4 montre également que les types de PSC correspondent à des domaines d'altitude légèrement différents. Les trois classifications s'accordent sur le fait que les STS se situent principalement entre 15 et 20 km, alors que les ICE sont généralement détectés autour de 20 km. Il est important d'interpréter avec prudence les graphes relatifs aux ICE puisque les valeurs de densité sont calculées à partir d'un nombre réduit d'observations. La catégorie NAT+mix s'étend sur un domaine plus important, de 15 à 25 km. Ce domaine plus important est attendu puisque cette catégorie inclut les nuages mixtes. Pour rappel, la catégorie MIX de B05 est définie comme toute mesure n'appartenant pas aux trois autres catégories.

Les températures associées aux types de PSC utilisés pour la figure 3.4 proviennent des réanalyses de ERA5. Ces températures sont tout à fait pertinentes pour une inter-comparaison des classifications, mais les réanalyses ne résolvent pas forcément les variations de petite échelle qui peuvent être importantes pour la formation des PSC. Aussi, le timing des mesures lidar ne correspond pas exactement aux données de température de ERA5 ni aux mesures de H_2O et HNO_3 de MLS, ce qui génère nécessairement des incertitudes. La pertinence de ERA5 pour l'étude des PSC à DDU a déjà été abordée en section 2.4 et sera de nouveau discutée en section 3.3.3.

3.3.2 Cas d'étude : mesure de PSC du 28/08/2015

La figure 3.4 a montré que B05, P11 et P18 avaient des résultats globalement comparables. Le schéma le plus récent, P18, qui est également celui qui inclut le plus faible nombre de classes, a été sélectionné pour analyser un cas d'étude de PSC à DDU et illustrer notre méthode de détection. La série temporelle de mesures lidar en question est présentée en figure 3.5a. Pour cette figure, le choix a été fait d'utiliser un temps d'intégration de 15 minutes, qui permet d'accéder à la dynamique de petite échelle des couches de PSC, au prix d'une réduction du SNR. Les profils sont lissés horizontalement sur une fenêtre temporelle de 30 minutes. La série temporelle de la figure 3.5 a été acquise le 28 août 2015 entre 10 :05 AM et 8 :20 PM. La figure 3.6 présente les sorties d'un modèle de chimie-transport de notre laboratoire (REPROBUS couplé au modèle de transport MIMOSA) simulant les PSC à partir

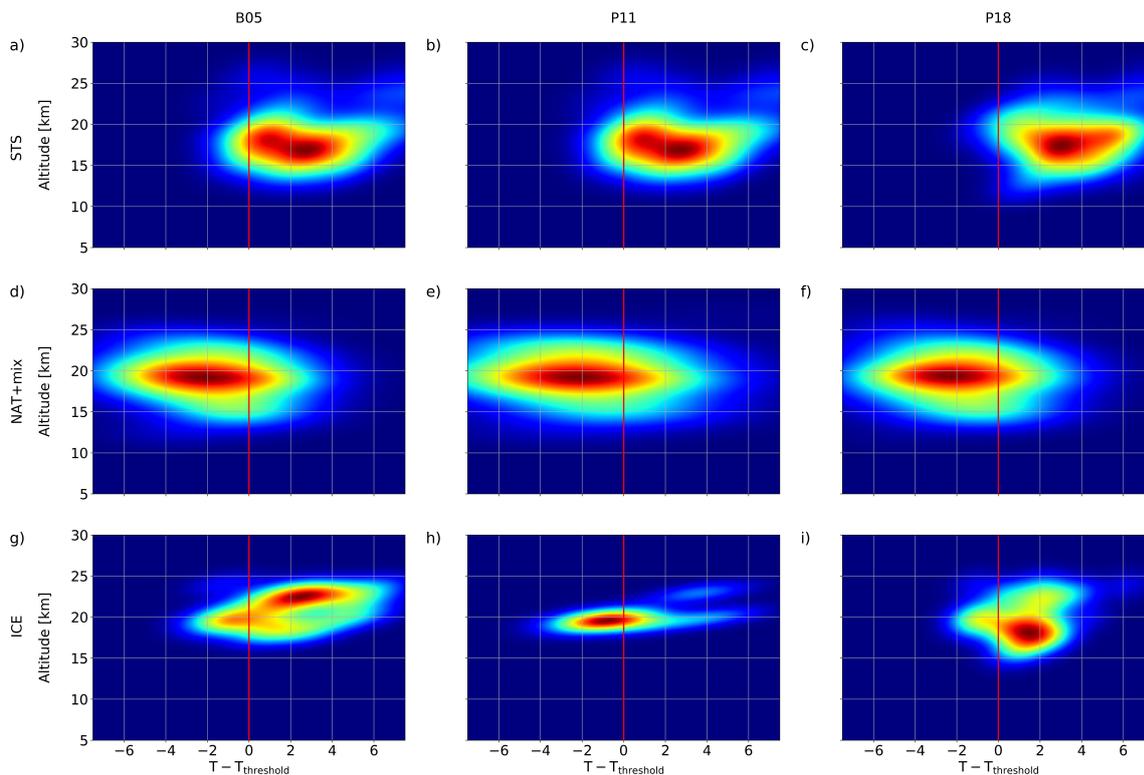


FIGURE 3.4 – Distributions des détections de PSC à DDU de 2007 à 2020 en fonction de l'altitude et de la température par rapport au seuil pertinent (T_{NAT} , T_{STS} ou T_{ICE}). Les lignes correspondent aux types STS, NAT+mix et ICE de haut en bas. Les colonnes correspondent aux schémas B05, P11 et P18 de gauche à droite.

d'hypothèses d'équilibre thermodynamique, **d'une distribution modale pour la microphysique** et de traceurs de température du temps passé par une masse d'air sous T_{NAT} et T_{ICE} . De plus amples détails sur le modèle de transport sont disponibles dans [Hauchecorne et al. \[2002\]](#) et sur le modèle de chimie dans [Lefèvre et al. \[1994\]](#). La figure [3.6](#) prévoit la présence de PSC aux températures potentielles de 435 K, 475 K et 550 K dans une moindre mesure. Nos mesures, exposées en figure [3.5a](#) valident ce modèle avec une présence claire aux niveaux 435 K et 475 K, et peu ou pas de PSC à 550 K. Pour la figure [3.5c](#), la température T_{ICE} a été calculée à partir de la mesure de H_2O de MLS à DDU la plus proche de la mesure lidar.

La figure [3.5a](#) souligne la forte variabilité temporelle des couches de PSC aux latitudes de DDU. Il faut garder à l'esprit cette forte variabilité dans le cadre du compromis entre un bon SNR et une perte d'information causée par un lissage horizontal trop fort, en raison du transport des masses d'air lors de la mesure. La figure [3.5](#) met également en évidence le contraste entre la réalité complexe des champs de PSC en 3 dimensions et la tendance récente et légitime des classifications à simplifier les schémas. Les PSC évoluent continuellement en fonction de leur environnement stratosphérique. Alors que les particules de PSC sont constamment en train de grossir ou de

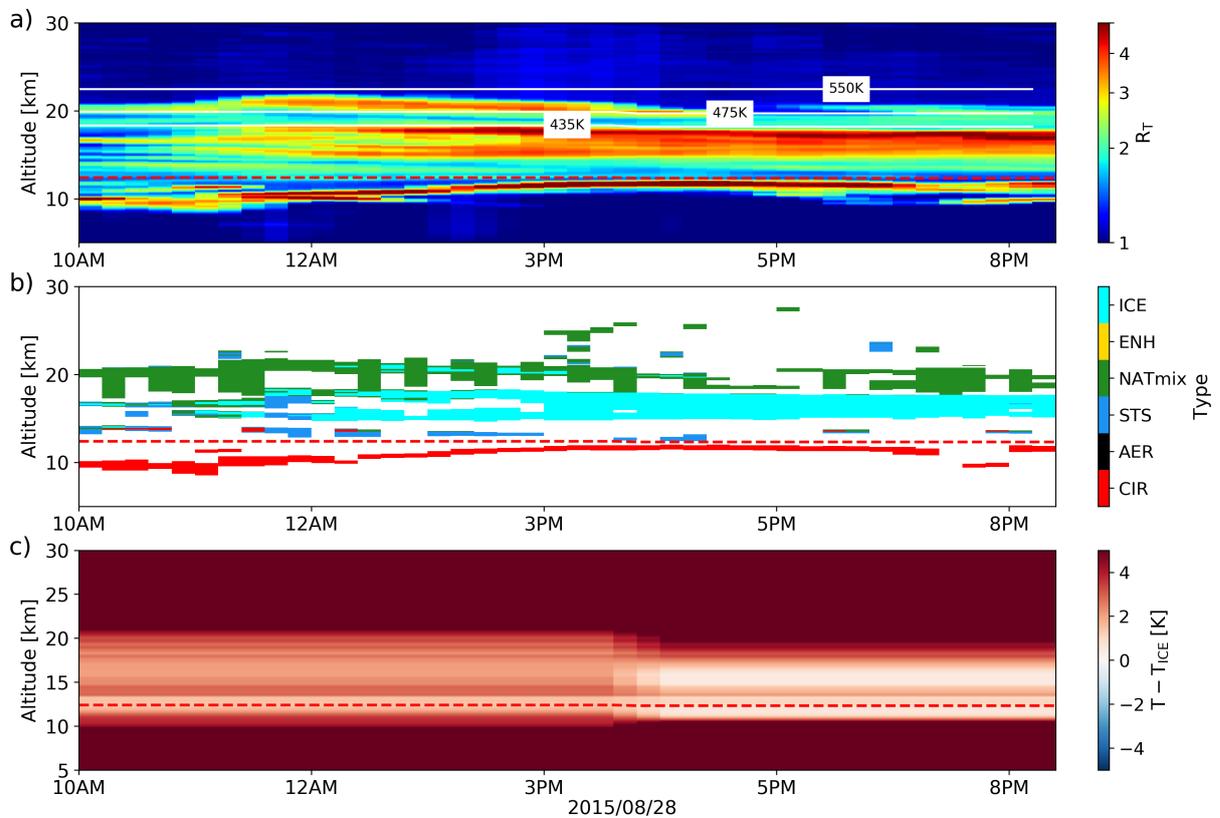


FIGURE 3.5 – Rapport de rétrodiffusion à 532 nm des mesures lidar acquises à DDU le 28/08/2015 (a). Types de PSC identifiés par P18 (b) et températures de ERA5 à DDU par rapport à T_{ICE} , calculée à partir de la mesure de H_2O de MLS du jour (c). La courbe rouge horizontale indique la position de la tropopause dynamique calculée à partir des données de ERA5.

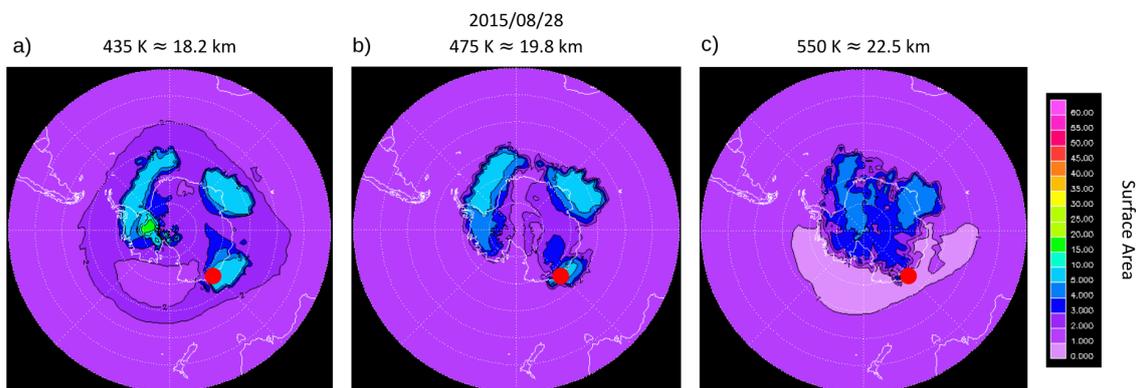


FIGURE 3.6 – Cartes de surface de PSC [$\mu m^2/cm^3$] issues du modèle Reprobus pour le 28/08/2015 à 435 K (a), 475 K (b) et 550 K (c). La position de DDU est indiquée par les points rouges.

rétrécir, en absorbant le H_2O ou HNO_3 de la phase gazeuse ou au contraire en l'enrichissant, les schémas de classifications sont basés sur des seuils fixes comme l'historique de température des masses d'air n'est pas pris en compte. Sur la figure 3.5b, à environ 5 PM, le type du PSC identifié à 20 km alterne entre NATmix à ICE. Comme cette mesure est traitée avec P18, cela implique que R_{532} a franchi le seuil $R_{532,ICE}$ à plusieurs reprises. La composition chimique de ce PSC n'a peut être pas changé, mais ses propriétés optiques, telles que mesurées par le lidar et tenant compte des incertitudes liées à ces mesures, l'ont fait passé d'une classe à une autre.

Les figures 3.5a et b illustrent également la structure en fines couches des champs de PSC, notamment entre 10 AM et 3 AM. Au début de la session de mesures, certaines couches en basse stratosphère sont interprétées comme des STS alors que celles situées plus haut sont vues comme des NAT. Puis, à partir de 12PM et jusqu'à la fin de la session, R_{532} augmente et le PSC devient majoritairement ICE. Cette évolution est cohérente avec l'évolution des températures de ERA5 visibles en figure 3.5c. Dans la première moitié de la session, la température de la zone entre 10 et 18 km est légèrement supérieure à T_{ICE} mais atteint ensuite ce seuil sur un domaine plus restreint qui correspond avec la détection lidar des figures 3.5a et b, pour laquelle la couche devient de plus en plus fine.

Pour pousser plus loin cette étude, nous avons décidé de s'intéresser à l'évolution de la température lors de ces mesures par rapport à T_{ICE} . La figure 3.7a compare T_{ICE} (droite bleu ciel) aux profils de température de ERA5 à 11 AM, 6 PM et 11 PM (courbes jaune, verte et noire respectivement). Le profil de ERA5 à 11 PM est inclus afin de comparer avec la radiosonde lancée à DDU à environ 11 PM (courbe bleue). L'écart entre les températures de ERA5 et de la radiosonde est en fait en partie lié à la dérive du ballon portant la radiosonde à mesure que ce ballon s'élève. Les figures 3.7b et c montrent des champs de température de ERA5 autour de DDU à 11 PM à 70 hPa et 100 hPa (environ 15 et 17 km respectivement), ainsi que la trajectoire de la radiosonde de DDU (points rouges et noirs). Les points rouges montrent la localisation de la radiosonde lorsqu'elle est située entre 14 et 18 km, c'est-à-dire dans la zone correspondant au PSC ICE détecté à DDU. Cet exemple illustre l'importance d'utiliser des produits de réanalyse pour contextualiser les mesures par radiosonde à DDU, comme cela a été discuté en section 2.4.2. Alors que les températures de ERA5 entre 14 et 18 km à DDU sont compatibles avec un PSC ICE, la conclusion que l'on pourrait faire avec la radiosonde seule est différente. Cela est dû à la localisation de DDU, qui cause une forte dérive des ballons et se situe dans une zone où de fortes variations locales de température peuvent exister.

3.3.3 Jeux de données de température

Le traitement des mesures lidar repose grandement sur des profils de température de qualité, de manière à calculer aussi précisément que possible les composantes moléculaires des coefficients d'extinction et de rétrodiffusion et ainsi isoler la contribution de Mie du signal brut mesuré. La caractérisation de mesures de PSC est aussi intimement liée à des seuils de température comme cela a été montré avec les figures 3.5 et 3.7. À ce titre, la

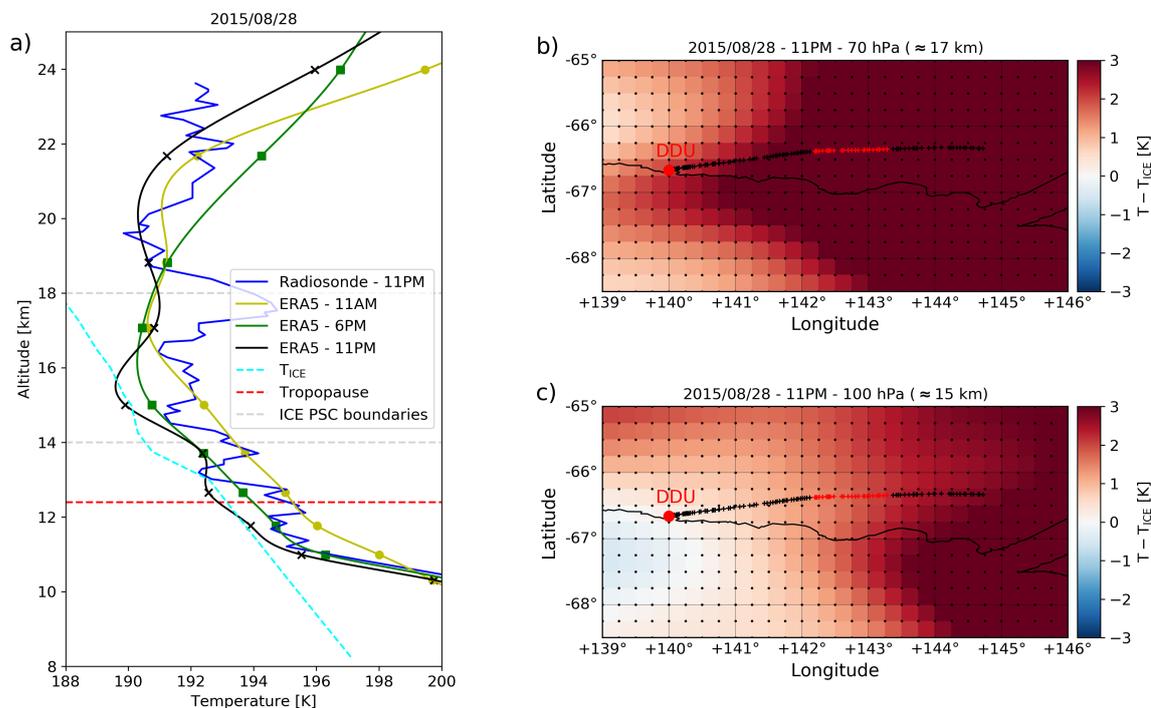


FIGURE 3.7 – (a) Profils de température du 2015/08/28 à DDU d’une radiosonde locale lancée à 11 PM (courbe bleue), des réanalyses de ERA5 à 12 AM (courbe verte) à 6 PM (courbe jaune) et à 11 PM (courbe noire). La température seuil T_{ICE} est indiquée en bleu ciel, la droite rouge représente la tropopause dynamique calculée à partir de ERA5. Les limites du PSC ICE détecté à DDU entre 3 et 8 PM sont représentées en gris. (b) and (c) Champs de température de ERA5 le 2015/08/28 à 11 PM à respectivement 70 hPa (≈ 17 km) et 100 hPa (≈ 15 km). La trajectoire de la radiosonde est indiquée en points noirs et rouges. Les points rouges correspondent à sa position entre 14 et 18 km.

source de données de température doit être sélectionnée avec attention. La discussion sur les températures est présente dans la version intégrale de cet article peut être retrouvé en annexe A. Comme ce point a été longuement développé en section 2.4, la partie correspondante a été coupée du présent chapitre pour passer directement à la section suivante qui traite de l’établissement d’une tendance d’occurrences de PSC à DDU.

3.3.4 Établissement d’une tendance d’occurrences de PSC à DDU

Comme annoncé en introduction, un objectif majeur des stations sol est l’établissement de tendances décennales. De telles tendances sont précieuses puisqu’elles reflètent l’évolution de la stratosphère en terme de température et de composition chimique. Maintenir des instruments à hautes latitudes pendant des décennies est un défi technique et logistique, notamment afin d’optimiser les capacités opérationnelles. De mauvaises conditions

météorologiques ou une importante couverture nuageuse empêchent les mesures lidar. Ainsi, comparer un nombre brut de jours de détection de PSC par an serait fortement biaisé par le nombre de jours par an pendant lesquels le lidar est effectivement en fonctionnement. Nous avons fait le choix de combiner les statistiques des mesures lidar à un proxy basé sur la température, en s'appuyant sur le seuil de température T_{NAT} en deçà duquel les PSC peuvent se former. NCEP, ERA5 et IASI sont utilisés comme données de température au dessus de DDU. À l'aide de ces données, un nombre de jours potentiels de PSC est calculé, c'est-à-dire un nombre de jours durant lesquels des PSC pourraient se former si l'on se base seulement sur les données de température. Le nombre de jours de PSC par an est la variable considérée afin de contourner la question délicate de délimiter un PSC, spatialement ou temporellement.

Pour des questions de cinétique chimique principalement, les PSC se forment généralement quelques degrés sous T_{NAT} [Dye et al., 1992]. Utiliser le critère $T - T_{NAT} < 0$ pour statuer si un jour est un jour potentiel de PSC pourrait donc mener à une surestimation du nombre de jours de PSC. Afin d'affiner ce critère, nous avons calculé le nombre de jours satisfaisant la condition $T - T_{NAT} < \Delta T$ par an, pour des valeurs de ΔT variant de 0 K à -10 K, pour les jours auxquels des mesures lidar ont été réalisées. Précisons que pour chaque jour, la valeur de T_{NAT} a été calculée à partir des mesures coïncidentes de H_2O et HNO_3 de MLS à DDU. Les résultats obtenus pour les différentes valeurs de ΔT ont été comparés avec le nombre de jours de PSC effectivement mesurés par le lidar. Pour NCEP, ERA5 et IASI, le calcul était au plus proche des mesures pour le critère $\Delta T = -1 K$. La figure 3.8 montre le nombre de jours potentiels de PSC par an, de 2007 à 2020 calculés à partir de ce critère en utilisant ERA5 (en vert), NCEP (en bleu) et IASI (en fuchsia), ainsi que le nombre de jours pour lesquels un PSC a été mesuré par le lidar de DDU, indiqué par des triangles rouges, et par le lidar spatial CALIOP dans la zone de DDU, indiqué par des triangles noirs. Les flèches grises représentent, par an, le nombre de jours satisfaisant le critère $T - T_{NAT} < -1 K$ pendant lesquels le lidar n'a pas pu être opéré. Les valeurs de T_{NAT} ont été calculées à partir des mesures de concentration de H_2O et HNO_3 de MLS à DDU.

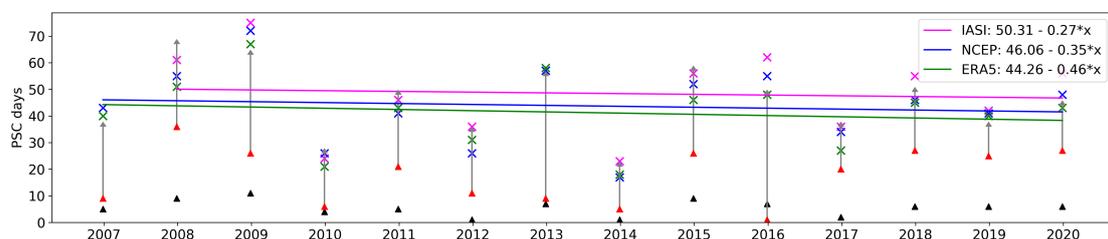


FIGURE 3.8 – Nombre de jours par an, de 2007 à 2020, pour lesquels le lidar de DDU a mesuré un PSC (triangles rouges), idem pour CALIOP à DDU (triangles noirs). Nombre de jours de PSC potentiels estimé à partir de ERA5 (en vert), NCEP (en bleu) et IASI (en fuchsia), en utilisant le critère $T - T_{NAT} < -1K$. Les flèches grises indiquent le nombre de jours pour lesquels le critère $T - T_{NAT} < -1K$ est satisfait sans qu'aucune mesure lidar ne soit disponible.

Logiquement, le nombre de jours de PSC par an détectés par le lidar sur la figure 3.8 est inférieur à ceux estimés

par NCEP, ERA5 et IASI. Les trois jeux de données ont été utilisés ici pour souligner que malgré leurs différences, ils s'accordent sur la tendance. On peut noter que IASI indique davantage de jours potentiels de PSC, ce qui est en accord avec la figure 2.16 où il apparaît que les températures de IASI sont inférieures aux radiosondes de DDU sur certains domaines de la stratosphère, ce qui n'est pas le cas de NCEP et ERA5. Il a été établi précédemment que ERA5 est le jeu de données le plus approprié à DDU et cette figure permet donc de noter une tendance décroissante de -4,6 jours de PSC par décennie qui n'aurait pas pu être déduite des mesures lidar seules. Cette tendance de 14 ans reste significative lorsque l'on teste sa sensibilité au critère ΔT ou à l'impact d'années singulières. Compte tenu du critère utilisé, cette tendance signifie que la température de la stratosphère au dessus de DDU suit une tendance opposée.

La tendance de température calculée à partir des mesures IASI sur la période 2008-2020 montre un réchauffement significatif au dessus de DDU de 0.1 K/an entre 200 et 70 hPa. Le profil vertical de cette tendance, adaptée de Bouillon et al. [2022], est montré en figure 3.9. La tendance de température de ERA5 sur la même période montre des résultats très proches. Comme cela est avancé par Tritscher et al. [2021], l'accélération de la circulation Brewer-Dobson liée au changement climatique contrebalance le refroidissement attendu de la stratosphère à hautes latitudes causé par les gaz à effet de serre. Le rétablissement de la couche d'ozone contribue également à une augmentation des températures stratosphériques [WMO, 2018]. Malgré le fait que Bouillon et al. [2022] indiquent une tendance positive des températures non spécifique à DDU, il est important de noter qu'une tendance sur la taille ou la localisation du vortex polaire pourrait contribuer à la tendance observée à DDU. Cela est toutefois hors du sujet du présent chapitre.

Si cette tendance sur 14 ans est négative, ce n'est pas le cas sur de plus longues périodes : en se basant sur la période 1992-2020, nous concluons à l'absence de tendance significative. Cela est cohérent avec des études récentes qui concluent à l'absence de tendance significative dans les occurrences de PSC à l'échelle continentale sur de plus longues périodes [Tritscher et al., 2021]. Il est important de noter que David et al. [2010] ont établi une tendance de températures à DDU en se basant sur 50 ans de mesures par radiosondes à la station et ont conclu à l'absence de tendance significative en ce qui concerne les températures hivernales. David et al. [2010] concluent également à une tendance positive mais non significative des occurrences de PSC à DDU sur la période 1989-2008. De manière similaire, les tendances calculées avec ERA5 sur la période 1990-2020 montre un réchauffement faible voire non significatif [Bouillon, 2021], ce qui est cohérent avec les études ayant travaillé sur de plus longues périodes [Randel et al., 2016, Maycock et al., 2018]. Cela pourrait suggérer que le rétablissement de la couche d'ozone s'est renforcé sur la dernière décennie.

En évaluant la paramétrisation des PSC dans les modèles climatiques, Tritscher et al. [2021] affirment que les volumes de PSC calculés à partir des températures de réanalyse de ERA-Interim en utilisant le critère $T < T_{NAT}$ surestiment d'environ 50% les volumes de PSC lorsque l'on compare avec les mesures satellites. Une telle surestimation pourrait être due aux approximations faites dans le calcul de T_{NAT} . Surtout, cette estimation fait l'hypothèse

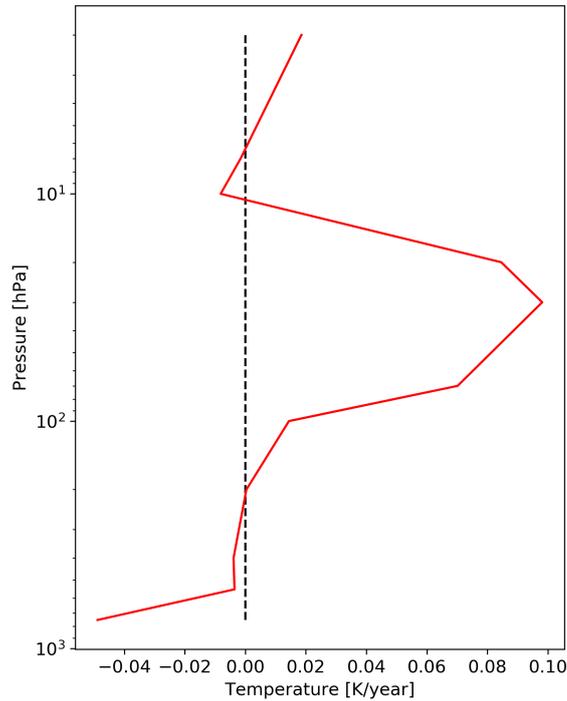


FIGURE 3.9 – Tendence de température à DDU, à partir des mesures IASI, de 2008 à 2020. Figure adaptée de Bouillon et al. (2022)

que les couches de PSC formées occupent tout le volume stratosphérique disponible sous T_{NAT} . Cette hypothèse n'est pas accord avec les observations réalisées à DDU. Afin de chiffrer cela à l'aide des mesures du lidar de DDU, pour chaque détection de PSC à la station, nous avons calculé le domaine stratosphérique satisfaisant $T < T_{\text{NAT}}$ à l'aide des données de ERA5 ainsi que l'épaisseur géométrique des couches de PSC mesurées. La distribution de l'écart entre ces deux grandeurs, c'est-à-dire le domaine satisfaisant $T < T_{\text{NAT}}$ non occupé par des nuages pour des jours où un PSC a été détecté à DDU, est tracée en figure 3.10. Sur cette figure, seuls les jours où un PSC a été détecté à DDU et où ERA5 fournit des températures inférieures à T_{NAT} sont pris en compte. Les autres cas, c'est-à-dire les jours où ERA5 prévoit des températures théoriquement trop chauds pour former des PSC, représentent 29% des cas. De tels cas peuvent notamment s'expliquer par une variation locale permettant la formation de PSC mais n'étant pas résolue par les réanalyses. À l'exception de cas particulier, la figure 3.10 tend à montrer que le domaine stratosphérique satisfaisant $T < T_{\text{NAT}}$ est significativement plus important que l'épaisseur des PSC qu'il contient. Compte tenu du fait que ERA5 surestime légèrement les températures stratosphérique à DDU d'après la figure 2.15, l'écart entre l'épaisseur des couches de PSC et le domaine stratosphérique satisfaisant $T < T_{\text{NAT}}$ pourrait même être sous-estimé.

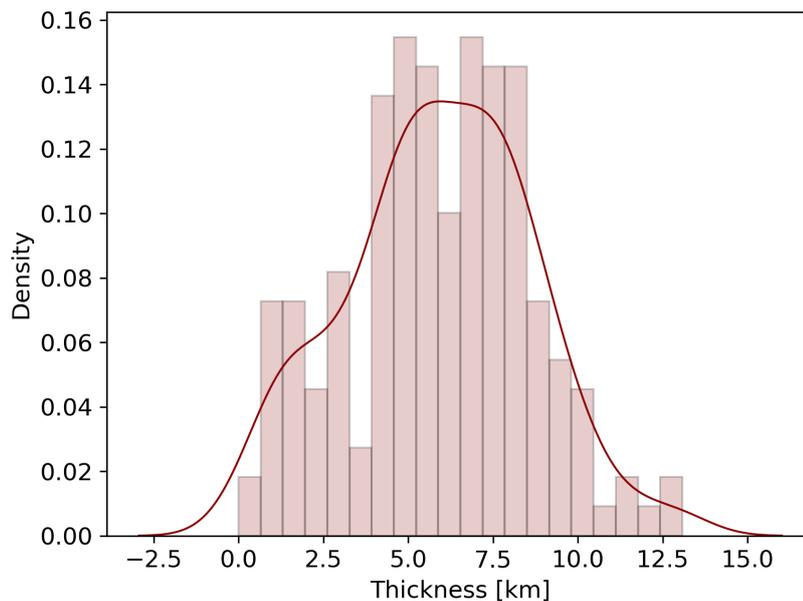


FIGURE 3.10 – Distribution de l'épaisseur du domaine stratosphérique satisfaisant $T < T_{\text{NAT}}$ inoccupé par des couches nuageuses, en km, pour les jours où un PSC est détecté à DDU.

3.4 Conclusion

Le lidar stratosphérique Rayleigh/Mie/Raman de DDU est l'un des rares instruments surveillant les aérosols et nuages stratosphériques en Antarctique depuis des décennies. Cette étude présente les mesures de PSC acquises à la station de 2007 à 2020. La haute résolution verticale ainsi que les capacités de caractérisation spectrale font du lidar l'instrument optimal pour caractériser des populations de particules, surtout aux altitudes stratosphériques. Les classifications de PSC sont basées sur les propriétés optiques des particules qui les composent et guident la paramétrisation des PSC dans les modèles climatiques. Avec le temps, de nombreux schémas de classification ont été publiés, reposant sur différentes espèces, types, variables et seuils. Dans cette étude nous avons analysé les mesures de PSC à DDU à l'aide de trois classifications reconnues, à savoir B05, P11 et P18. B05 est construit à partir de mesures sol, alors que P11 et P18 s'appuient sur les mesures spatiales de CALIOP. L'application de nos mesures à ces schémas aboutit à un bon accord mutuel. La proportion de ICE entre les classifications varie significativement, mais ces écarts sont la conséquence directe des différences de conception des schémas. Les mesures lidar de DDU sont aussi comparées à la distribution de types de PSC déduite des mesures de CALIOP à DDU. Mesures sol et spatiales conduisent à des distributions relativement similaires, à l'exception des catégories ICE et ENH. Cette divergence peut tout d'abord s'expliquer par le faible nombre de mesures de ICE réalisées à DDU. Surtout, la corrélation entre la couverture nuageuse troposphérique et la formation de PSC ICE suggérée par Achtert et al. [2012] et Adhikari et al. [2010] pourrait expliquer les différences entre les mesures de CALIOP et du

lidar de DDU car celui-ci ne peut pas être opéré en présence de forte couverture nuageuse troposphérique. Le lidar spatial a en effet un accès direct à la stratosphère sans extinction particulière significative. Enfin, les mesures de DDU montrent que les PSC ICE sont généralement observés à plus haute altitude que les STS et NAT.

À l'aide d'un exemple d'une longue série de mesures à DDU, nous avons souligné les spécificités de petite échelle des champs de PSC, notamment leur forte variabilité temporelle tant au niveau de leur étendue verticale que de leurs propriétés optiques. Cela a permis de discuter l'influence du temps d'intégration des mesures lidar, sol ou spatiales, en regard des seuils fixés par les classifications pour caractériser les couches sondées. Les schémas de classifications sont généralement construits à partir d'importants volumes de données, mais des jeux de données locaux, plus restreints, peuvent contribuer à la définition des différentes classes de nuages en affinant les comportements observés à méso-échelle. Nous avons aussi discuté de la pertinence des données de température en tant que proxy de petite échelle de la formation de PSC. Globalement, nous soulignons que la variabilité locale des mesures acquises à DDU est intimement liée à la dynamique du vortex polaire et à la prévalence du transport horizontal aux altitudes stratosphériques. Les réanalyses NCEP et ERA5 ainsi que le produit de température du satellite IASI ont été comparés aux mesures de radiosondes lancées quotidiennement à DDU. En raison de la localisation littorale de la station, une dérive horizontale significative des radiosondes au fil de leur ascension a été constatée et nous a mené à utiliser les températures de réanalyses pour les procédures de traitement des mesures lidar. Notre étude a montré que ERA5 est le jeu de données de température le plus précis et le plus pratique à utiliser à DDU. Dans un futur proche, les mesures de IASI pourraient s'avérer être une option intéressante pour les études menées à DDU : la précision des données de température est globalement satisfaisante, et le nombre de profils par jour à hautes latitudes est avantageux.

À l'aide d'un proxy basé sur la température qui vient compléter les mesures lidar à DDU, nous avons établi une tendance du nombre de jours de PSC par an sur la période 2007-2020. Cette tendance est statistiquement significative et légèrement négative, de -4,6 jours de PSC par décennie, et est à relier à une tendance opposée des températures stratosphériques aux hautes latitudes australes reportée par une étude récente [Bouillon et al., 2022].

Le volume de PSC est régulièrement estimé dans les modèles en se basant sur le volume stratosphérique satisfaisant $T < T_{\text{NAT}}$. Par rapport aux observations, cette méthode surestimerait les volumes de PSC d'environ 50% [Tritscher et al., 2021]. Les mesures lidar de DDU montrent que les PSC détectés occupent généralement un domaine bien plus restreint que celui satisfaisant ce critère de température. Cela devrait avoir un impact sur les efficacités chimiques des taux de conversion des espèces impliquées dans le cycle de l'ozone, mais ces considérations sortent du cadre de cette étude.

Enfin, la station DDU s'avère être un site privilégié pour étudier l'entrée de masses d'air au sein du vortex, qui a été l'objet d'une étude récente dans le cadre de la détection d'aérosols introduits en stratosphère par les feux de forêt majeurs "Black Summer" en Australie en 2019 [Tencé et al., 2022]. L'impact global des aérosols produits par l'activité volcanique ou les feux de forêt éveille un intérêt scientifique croissant. Ces aérosols, après des mois de

transport, présentent des propriétés optiques qui chevauchent celles de certains PSC, notamment les STS. Pouvoir distinguer des aérosols soufrés d'aérosols carbonés ou de couches de STS nécessite d'améliorer les capacités instrumentales actuelles. Approfondir le sujet des potentielles interactions entre les couches d'aérosols et les PSC demande également de disposer de schémas de classification de PSC bien établis.

Cette étude témoigne de la richesse des mesures lidar menées à la station DDU et permet d'acquérir une vision précise des mécanismes de petite échelle propres aux PSC. Si le chapitre 1 a fourni le cadre théorique général des PSC ainsi que les raisons qui motivent les études portant sur ces processus, ce chapitre atteste du rôle d'une station de mesures dans de telles études. Le point de vue d'un instrument sol vient compléter les atouts des mesures spatiales et des modélisations. La mise au point de classifications pouvant servir au mieux les modèles ou encore la vérification d'hypothèses utilisées dans ces modèles par nos moyens instrumentaux démontrent la complémentarité de ces outils.

Comme l'agencement du chapitre 1 et la conclusion de cette étude le laissent penser, un des intérêts de l'étude des PSC est de pouvoir appréhender au mieux les conséquences des perturbations stratosphériques. Le changement climatique et les évolutions de température qu'il occasionne ont déjà été discutés à travers la mise au point d'une tendance de jours de PSC par an à DDU. Par ailleurs, et cela a rapidement été abordé, les propriétés optiques des aérosols et de certains PSC peuvent être similaires et cela pose la question de la différenciation de ces couches de natures différentes. Dans la suite de ce manuscrit, nous allons nous intéresser aux injections d'aérosols perturbant le régime de fond de la stratosphère. Le chapitre suivant présente ainsi l'étude des aérosols injectés en stratosphère par les feux de biomasse exceptionnels qui ont marqué l'Australie en 2019 et 2020.

Résumé du chapitre 3

- Les mesures de nuages stratosphériques polaires (PSC) acquises à la station antarctique Dumont d'Urville (DDU) de 2007 à 2020 ont été présentées et appliquées à trois schémas de classifications basés sur le lidar sol situé à Esrange en Suède et sur le lidar spatial CALIOP. À l'exception de la catégorie ICE dont la définition varie significativement entre les trois schémas, ces derniers ont abouti à des répartitions des types de PSC observés à DDU mutuellement cohérentes, à savoir environ 30-35% STS, 60-65% de NAT et 5% de ICE..
- Les mesures de DDU ont été comparées en volume à celles acquises par le lidar spatial CALIOP dans un domaine autour de DDU.
- Un exemple de PSC observé à DDU a été discuté pour souligner certaines spécificités des champs de PSC par rapport aux autres couches diffusantes stratosphériques et mettre en exergue les différences entre les schémas de classification globaux et la réalité fine et dynamique de ces champs.
- Une tendance du nombre de jours d'occurrence de PSC par an, de 2007 à 2020 et de juin à septembre, a été calculée à partir des mesures lidar et des données de température de réanalyse de NCEP, ERA5 et des mesures spatiales de IASI. Cette tendance est légèrement négative, de -4.6 jours de PSC par décennie. Elle est mécaniquement le reflet d'une tendance opposée des températures stratosphériques sur la période.
- L'épaisseur géométrique des PSC détectés à DDU a été comparée au domaine stratosphérique dont les températures permettent la formation de PSC, afin de mettre en évidence l'écart entre ces deux grandeurs.

Chapitre 4

Étude des aérosols injectés par le Black Summer 2019-2020

Après s'être intéressé à l'étude climatologique des PSC à DDU de 2007 à 2020 dans le chapitre précédent ainsi qu'à leur comportement à petite échelle, ce chapitre se concentre maintenant sur l'étude d'une perturbation de la stratosphère mentionnée dans le chapitre 1. De fin 2019 à début 2020, l'Australie a connu l'épisode de feux de forêt le plus important de son histoire depuis que ces événements sont consignés. Cet événement a, comme nous allons le voir, causé des injections massives d'aérosols en stratosphère d'une ampleur sans précédent pour un événement de cette nature. Compte tenu de la position de ces feux et de la circulation atmosphérique générale, ces aérosols se sont peu à peu répandus dans la stratosphère australe, et ont été détectés par le lidar de DDU. Ces mesures ont permis une étude inédite qui a notamment mise en évidence l'ampleur de cet événement, mais également permis une caractérisation optique des aérosols carbonés. Cet événement pose la question des conséquences de telles injections sur la composition et les processus stratosphériques, notamment la formation des PSC.

Cette étude a fait l'objet d'un article dans la revue *Journal of Geophysical Research*, intitulé "Australian Black Summer smoke observed by lidar at the French Antarctic station Dumont d'Urville", [Tencé et al. \[2022\]](#). Comme pour le chapitre précédent, cet article est disponible en intégralité et en anglais en annexe B. Ces feux de forêt australiens, nommés "Black Summer", ont également été le sujet d'une importante publication de Sergey Khaykin, publiée dans *Communications Earth & Environment* : "The 2019/20 Australian wildfires generated a persistent smoke-charged vortex rising up to 35 km altitude", à laquelle j'ai contribué [Khaykin et al. \[2020\]](#). Cette publication reporte le comportement dynamique inédit adopté par les aérosols injectés en stratosphère lors de cet événement. En effet, une part des aérosols injectés a formé une structure compacte isolée par un vortex, qui s'est élevée jusqu'à 35 km en absorbant le rayonnement solaire. Bien que ce comportement dynamique n'est pas le sujet de cette thèse, cela illustre l'importance d'étudier de tels événements. L'étude des perturbations d'un système est riche

en enseignements sur son fonctionnement. Dans le cadre de cet article, j'ai réalisé les calculs de masses de traceurs chimiques et d'aérosols injectés en stratosphère selon la méthode décrite en section 2.3. Ce chapitre présente le Black Summer et les injections stratosphériques associées par le biais de ces deux études. De manière similaire au chapitre précédent, les parties des publications qui présentent des redondances avec les sections précédentes ont été coupées, les articles ont été traduits et certains commentaires ont pu être ajoutés dans un objectif de cohérence globale.

4.1 Introduction

L'Australie a connu une saison de feux sans précédent entre août 2019 et mars 2020, baptisée "Black Summer" [Davey and Sarre, 2020]. Bien que le pays soit coutumier de ce genre d'épisodes saisonniers [Cheney, 1976, Lucas et al., 2007, Sharples et al., 2016], celui-ci a battu des records de durée et d'intensité [Davey and Sarre, 2020]. Une importante sécheresse et de fortes chaleurs sont des paramètres cruciaux gouvernant l'ampleur des feux de forêt [McArthur, 1967]. Le réchauffement climatique aura donc tendance à augmenter la fréquence d'événements extrêmes de ce type [Hennessy, 2006, Clarke et al., 2013, Dowdy et al., 2019]. C'est notamment pour cette raison qu'il est important d'étudier l'impact de ces phénomènes à grande échelle puisque les processus de transport impliquant la formation de PyroCumulonimbus (pyroCb) peuvent injecter de grandes quantités de particules et fumées directement dans la stratosphère, où le temps de résidence des aérosols n'est pas réduit par la formation de nuages et les précipitations.

Comme cela a été abordé au chapitre 1, la dynamique de la stratosphère hivernale antarctique est caractérisée par de forts vents circulant autour du continent d'environ mai à octobre. Ce vortex polaire maintient les masses d'air qu'il enferme isolées des masses d'air plus chaudes des moyennes latitudes durant l'hiver. Cela permet la formation de PSC, qui ont un rôle central dans les mécanismes de destruction d'ozone (voir section 1.2.1).

Les aérosols stratosphériques ont un impact direct sur le bilan radiatif terrestre en réfléchissant et en absorbant le rayonnement solaire, mais aussi des impacts indirects comme l'intensification des processus de nucléation [Charlson et al., 1992, Penner et al., 2001]. Alors que le rôle de ces aérosols est étudié depuis de nombreuses années, de nombreux points restent à élucider comme le montrent des études récentes (par exemple, au sujet des tendances stratosphériques à long terme, des conséquences du changement climatique [Kremser et al., 2016] ou encore de la contribution des feux de forêt à la charge stratosphérique en aérosols [Peterson et al., 2017, 2021, Khaykin et al., 2020]). Les éruptions volcaniques modérées sont maintenant reconnues comme sources majeures d'aérosols stratosphériques [Khaykin et al., 2018, Bègue et al., 2017], notamment dans le cas d'éruptions régulières. La distinction entre les régimes dits de repos et volcaniques est délicate à établir et demeure un défi pour les réseaux de surveillance malgré d'importants progrès des capacités instrumentales, notamment dans le domaine spatial. Les aérosols volcaniques influencent le climat et favorisent la destruction d'ozone stratosphérique [Kremser

et al., 2016]. Bien sûr, les conséquences sont plus marquées lors d'éruptions majeures. Par exemple, l'éruption du Pinatubo en 1991 a entraîné une chute des températures de surface d'environ 0.5°C sur plus de 2 ans [Soden et al., 2002]. Par ailleurs, d'importantes incertitudes persistent sur l'ampleur et l'intensité des impacts des aérosols injectés en stratosphère à la suite de feux de forêt. Une étude récente [Martinsson et al., 2019] suggère que la quantité d'aérosols carbonés stratosphériques est sous-estimée. De plus, les campagnes de mesures in-situ restent rares et la détection de panaches d'aérosols fins est délicate. Depuis le sol, ces panaches peuvent être manqués en raison de la vitesse des masses d'air par rapport à la position fixe de l'instrument. Depuis l'espace, la calibration instrumentale doit être optimale en raison de la finesse optique des aérosols et des SNR nécessairement plus faibles associés aux mesures de ces instruments. En ce qui concerne les mesures lidar, la différenciation des aérosols mesurés nécessite un important nombre de variables (rapports de rétrodiffusion, de couleur, de dépolarisation, ou encore rapport lidar) ainsi qu'un SNR satisfaisant.

Le déclenchement de pyroCb par des feux de forêt d'ampleur est désormais bien documenté [Fromm et al., 2006, 2010, Khaykin et al., 2018, 2020, McRae et al., 2015, Peterson et al., 2017, Tory et al., 2018, Dowdy et al., 2017, 2019]. De nombreux pyroCb se sont formés entre le 29 décembre 2019 et le 4 janvier 2020 [Kablick III et al., 2020, Khaykin et al., 2020], injectant des quantités considérables de fumées contenant des aérosols dans la stratosphère. Ces matériaux ont ensuite été transportés sur des milliers de kilomètres [Khaykin et al., 2020, Ohneiser et al., 2020], et une partie a finalement atteint les hautes latitudes australes et la région antarctique. Bien que le transport d'aérosols issus de feux de biomasse jusqu'à ces latitudes ait déjà été documenté [Fiebig et al., 2009, Jumelet et al., 2020], le Black Summer a atteint un niveau sans précédent en terme de quantités émises et d'impacts atmosphériques [Davey and Sarre, 2020, Kablick III et al., 2020, Khaykin et al., 2020]. À l'aide de mesures de flux au sommet de l'atmosphère, [Hirsch and Koren, 2021] ont estimé que les aérosols injectés ont entraîné un refroidissement de plus de $1.0 \pm 0.6 \text{ W m}^{-2}$ au-dessus des régions océaniques non nuageuses.

De nombreux satellites surveillent les occurrences et les conséquences globales de tels évènements stratosphériques, en terme de composition chimique (Microwave Limb Sounder - MLS, Ozone Monitoring Instrument - OMI, Infrared Atmospheric Sounding Interferometer - IASI, Atmospheric Infrared Sounder - AIRS) et particulière (Ozone Mapping and Profiler Suite - OMPS, Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation - CALIPSO). Toutefois, les panaches d'aérosols âgés, qu'ils soient soufrés ou carbonés, présentent des propriétés optiques proches des seuils de détection des équipements de télédétection spatiaux actifs [Baars et al., 2019, Hu et al., 2019, Jumelet et al., 2020]. Les lidar sol sont complémentaires des instruments satellites grâce à leur haute résolution verticale et leur taux d'échantillonnage, notamment dans les régions polaires peu couvertes par ailleurs.

Cette étude s'appuie sur les mesures lidar de DDU (voir la position de la station et des principaux feux du Black Summer sur la figure 4.1) ainsi que sur des mesures satellites et des modélisations de trajectoires pour caractériser les aérosols injectés en stratosphère par les feux australiens de 2019 - 2020. Tout d'abord, la section suivante fournit une description des évènements étudiés. Puis, la section 4.3 introduit les instruments et données utilisées. Enfin,

la section 4.4 présente et discute les résultats de l'étude, et une caractérisation des aérosols du Black Summer est exposée et comparée à la littérature existante. Enfin, la section 4.5 énonce les conclusions de cette étude.

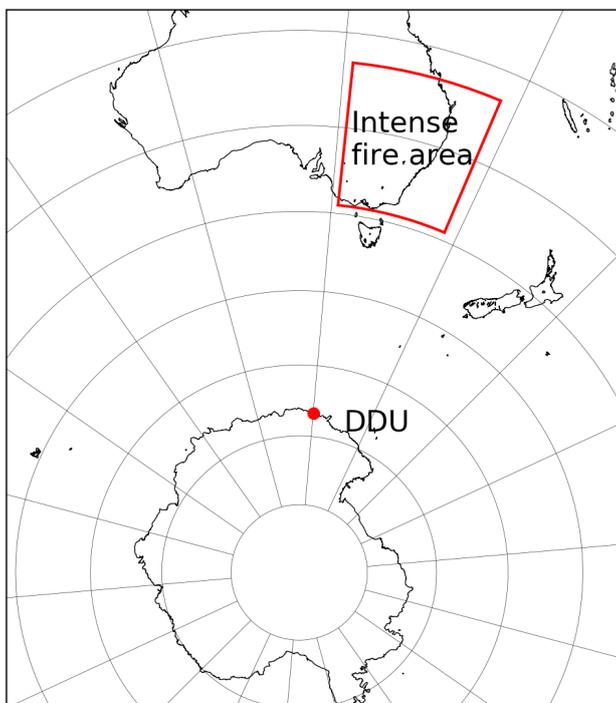


FIGURE 4.1 – Carte de l'Australie et de la station française antarctique Dumont d'Urville (66°S - 140°E). Le rectangle rouge délimite la zone d'incendies intenses [Peterson et al., 2021]

4.2 Déroulé du Black Summer

La saison des feux 2019 a débuté en août en Australie [Davey and Sarre, 2020] dans les régions de Queensland et New South Wales. Les principaux feux ont été déclarés sous contrôle et éteints début mars 2020. Ces incendies, nommés "Black Summer", se sont répandus sur plusieurs états et ont consumé une surface totale d'environ 103 000 km², soit approximativement deux fois plus que tout autre feu dans l'histoire de l'Australie [Davey and Sarre, 2020]. Le Black Summer a réduit en cendres plus de 8 millions d'hectares de forêts primitives, principalement constituées d'eucalyptus [Peterson et al., 2021], ont gravement atteint la biodiversité locale et fait de nombreuses victimes. Les fumées générées par ces feux ont drastiquement altéré la qualité de l'air des régions de Queensland, New South Wales, Australian Capital Territory et Victoria, impliquant de sérieuses conséquences en terme de santé publique

[Borchers Arriagada et al., 2020].

Les facteurs menant à une telle saison de feux sont nombreux, parmi lesquels une sécheresse sévère et des températures extrêmes [Nolan et al., 2020, Adams et al., 2020]. Plusieurs études explorent les combinaisons de spécificités climatiques qui pourraient expliquer une telle situation en Australie (notamment l'oscillation australe El Nino, le dipôle de l'océan indien et le mode annulaire austral) [Cai et al., 2009, Lim et al., 2019]. Lim et al. [2019] ont suggéré un lien entre les conditions climatiques australiennes en 2019-2020 et le réchauffement stratosphérique soudain exceptionnel qu'a connu l'hémisphère sud en 2019 [Safieddine et al., 2020].

Fin décembre 2019, plusieurs pyroCb ont injecté une quantité significative de fumées en stratosphère, permettant à ces panaches d'être transportés à grande échelle : [Kablick III et al., 2020] ont dénombré 18 épisodes de pyroCb entre le 29 décembre 2019 et le 4 janvier 2020. Le 5 janvier 2020, des panaches avaient atteint le Chili, parcourant ainsi plus de 11 000 km [Ohneiser et al., 2020]. Ces aérosols issus de feux de biomasse se sont progressivement répandus à travers la stratosphère australe en y augmentant considérablement la concentration en aérosols. La présente étude se concentre sur certains panaches qui ont été transportés à hautes latitudes et ont circulé autour de l'Antarctique. Environ 20 jours après les pyroCb, le 19 janvier 2020, les particules injectées par le Black Summer ont été détectées pour la première fois à la station DDU.

4.3 Instruments et données exploités

Les instruments et données exploités pour la mise en œuvre de cette étude, à savoir le lidar stratosphérique de DDU et les satellites OMPS, OMI et MLS ont été introduits au chapitre 2, respectivement par les sections 2.1.2, 2.2.2, 2.2.3 et 2.2.4. Les mesures lidar servent à la détection et la caractérisation optique des panaches d'aérosols, OMPS fournit des mesures d'extinction particulières, OMI des mesures d'indice aérosol UV et MLS des mesures de concentration de CO, de CH₃CN et de H₂O. Les mesures de MLS et de OMPS sont également converties en masses injectées en stratosphère, selon les méthodes présentées en section 2.3.

Par ailleurs, cette étude s'appuie également sur le modèle de simulation de trajectoires de masses d'air Hysplit (*Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory*) développé par la NOAA (*National Oceanic and Atmospheric Administration*) et le *Bureau of Meteorology* australien [Rolph et al., 2017, Stein et al., 2016]. Hysplit est ici utilisé dans sa configuration standard pour générer des trajectoires inverses afin d'établir des relations sources-récepteurs. Les trajectoires simulées arrivent toutes à DDU, entre janvier et juin 2020 à des altitudes entre 10 et 20 km. Les calculs sont basés sur les données de réanalyses GDAS1. La durée des simulations est choisie entre 200 et 315 heures afin d'avoir accès au transport à grande échelle des aérosols détectés à DDU.

4.4 Observations et résultats

Afin de tirer le meilleur parti des mesures lidar acquises à DDU et de les relier aux aérosols émis par le Black Summer, nous étudions tout d'abord la charge en aérosols de la stratosphère australe à l'aide de mesures satellites. La figure 4.2 montre la moyenne quotidienne du UV AI au sud de 30°S (courbes noire et grise) et dans un domaine centré autour de DDU (61.5-71.5°S, 130-150°E) (courbes rouges) pour l'année 2019/20 et pour la moyenne des 10 années précédentes. Cette figure souligne l'impact majeur des injections stratosphériques causées par le Black Summer australien, tel que vu par OMI dans l'ultraviolet. Les pyroCb ont presque doublé le UV AI moyen au sud de 30°S en comparaison aux 10 années précédentes. Les courbes rouges, correspondant au domaine autour de DDU, montrent logiquement une augmentation plus progressive en raison du temps de transport, et les valeurs de 2019/20 surpassent également la moyenne décennale à partir du 1er janvier.

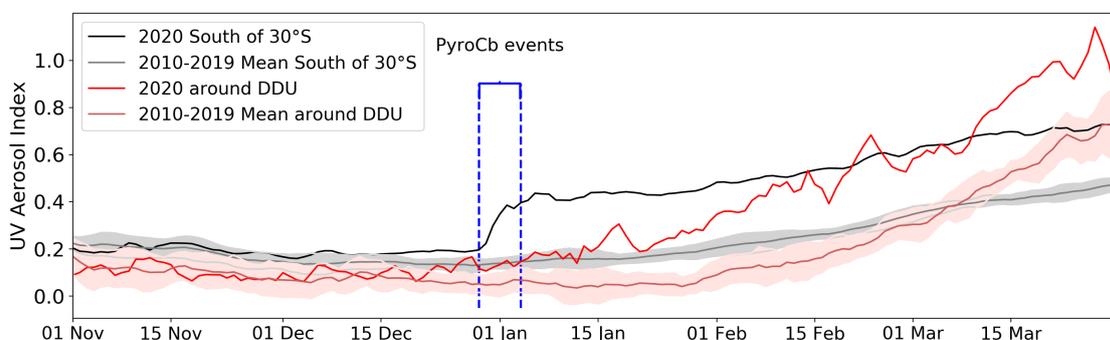


FIGURE 4.2 – Indice Aérosol UV mesuré par OMI moyenné au sud de 30°S (courbe noire pour 2019/2020, grise pour la moyenne 2010-2019) et dans le domaine délimité par 61.5°S-71.5°S ; 130°E-150°E autour de la station DDU (courbe rouge pour 2019/2020, rouge pâle pour la moyenne 2010-2019). L'écart type de la moyenne décennale est indiqué en couleurs grisées. Les droites bleues indiquent les périodes d'injections par pyroCb telles que reportées par Kablick III et al. (2020)

L'instrument OMPS/LP complète les mesures de OMI grâce notamment à un domaine spectral plus proche du domaine de sensibilité des aérosols. Le produit d'extinction aérosol à 675 nm est adapté aux aérosols et est par ailleurs proche de la longueur d'onde de 532 nm du lidar. Les mesures d'extinction sont moyennées dans le domaine s'étendant de 61.6°S à 71.6°S et de 130°E à 150°E. La figure 4.3a est une série temporelle des mesures d'extinction dans ce domaine en fonction de l'altitude, de 10.5 à 30.5 km.

Cette série temporelle montre la nette augmentation des valeurs d'extinction à partir du 17 et 18 janvier 2020, avec des couches d'aérosols détectées sur un large domaine, d'environ 11 à 20 km. Afin de comparer ces mesures d'extinction aux mesures lidar de DDU, nous avons produit une série temporelle du rapport de rétrodiffusion à 532 nm à partir de ces mesures en utilisant le même échantillonnage temporel. Cette série est présentée en figure 4.3b. Les bandes blanches verticales indiquent les jours pour lesquels aucune mesure lidar n'est disponible. L'instrument étant initialement conçu pour des mesures hivernales, il n'est pas opéré quotidiennement en été. Cependant, les

opportunités scientifiques récentes ont amené à revoir ce calendrier de mesures. Les premières signatures d'aérosols ont été détectées entre le 4 et le 8 novembre 2019. La figure 4.3c propose une vue détaillée de ces premières mesures. Durant cinq jours consécutifs, le lidar de DDU a détecté un signal régulier légèrement au-dessus de 15 km, présentant un R_{532} d'environ 1.2 et une dépolarisation proche de zéro (non montrée). Puis, le lidar de DDU a mesuré des ciels clairs jusqu'au 12 janvier 2020, où un léger signal d'aérosol a été détecté.

L'origine du panache d'aérosols détecté à DDU début novembre reste incertaine à partir des différents jeux de données disponibles. Il pourrait s'agir d'une injection précoce causée par les feux australiens, mais aucune injection significative n'a été reportée avant le 29 décembre 2019 [Khaykin et al., 2020, Kablick III et al., 2020, Peterson et al., 2021]. Selon Kloss et al. [2021], ce panache pourrait venir des éruptions du volcan Ulawun (les 21/06/2019 et 03/08/2019) puisque les auteurs ont montré qu'une part des aérosols soufrés injectés en stratosphère par ces deux éruptions a été transportée jusqu'aux hautes latitudes australes [Kloss et al., 2021, Figure 5]. Cependant, cette hypothèse n'explique pas le pic de CO mesuré par MLS en stratosphère, au sud de 65°S, à cette période (voir ci-dessous, figure 4.5). Enfin, des feux de forêt ont eu lieu en Afrique de l'Ouest de juin à août 2019 et semblent associés à un transport d'aérosols vers les hautes latitudes, d'après des cartes de UV AI produites à l'aide des mesures de OMI (voir section 5.1, où cette discussion est menée plus en détail) ainsi que des mesures de UV AI par OMPS disponibles en ligne sur la plateforme EOSDIS Nasa Worldview. En considérant ces différents arguments, nous favorisons l'origine de feux de biomasse en Afrique de l'Ouest. Surtout, cet exemple illustre la difficulté de déterminer avec certitude l'origine d'un panache d'aérosols détecté à DDU durant cinq jours consécutifs, malgré l'importante couverture offerte par les instruments satellites. Ce cas d'étude est davantage développé au chapitre suivant, en section 5.1.

Afin de quantifier plus précisément l'impact du Black Summer, il est intéressant d'estimer les masses des principaux constituants injectés en stratosphère. Dans le cadre de l'étude "*The 2019/20 Australian wildfires generated a persistent smoke-charged vortex rising up to 35 km altitude*" publiée dans *Communications Earth & Environment* [Khaykin et al., 2020] et mentionnée en introduction de ce chapitre, j'ai été amené à calculer les masses d'aérosols et de certaines espèces chimiques injectées en stratosphère par le Black Summer. Cette étude se concentre sur un processus dynamique engendré par ces feux et jamais observé auparavant. Une part des aérosols a formé un ensemble compact entouré d'un vortex qui s'est élevé jusqu'à 35 km dans la stratosphère à mesure que les aérosols qu'il enfermait absorbaient les radiations solaires. Pour cette étude, nous avons estimé les masses d'aérosols, de CO, H₂O et CH₃CN introduits en stratosphère à l'aide des mesures de OMPS et de MLS. Les méthodes utilisées pour ces estimations sont détaillées en section 2.3.

CO, H₂O et CH₃CN sont des traceurs chimiques utilisés pour suivre les panaches émis dans l'atmosphère par les feux de biomasse. Quantifier les masses de ces traceurs et des aérosols injectés en stratosphère permet de décrire l'évènement. Les valeurs absolues permettent de chiffrer l'ampleur d'un évènement, et leurs rapports en caractérisent la nature. Ici les masses ont été calculées entre 20°S et 82°S, au-dessus de la ligne de température

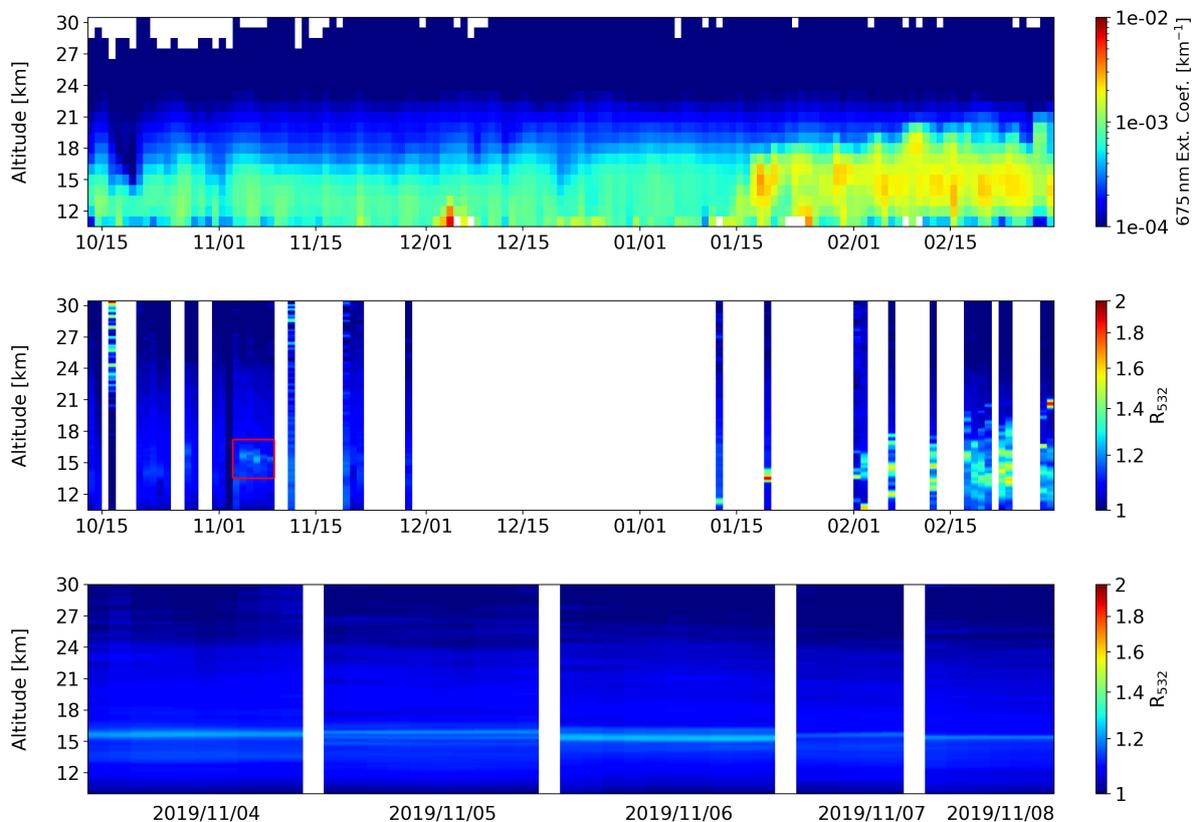


FIGURE 4.3 – Séries temporelles du 13/10/2019 au 29/02/2020 (a) du coefficient d'extinction à 675 nm de OMPS [km^{-1}] moyenné sur le domaine s'étendant de 61.6°S à 71.6°S et de 130°E à 150°E , et (b) de R_{532} , mesuré par le lidar de DDU. (c) Vue rapprochée de la série temporelle (b), du 04/11/2019 au 08/11/2019, correspondant à la zone délimitée en rouge sur la figure (b).

potentielle 380 K. Cette limite correspond à ce qui est régulièrement désigné comme le "*overworld*", et est souvent utilisée pour exclure la basse stratosphère des moyennes et hautes latitudes : au-delà de 380 K, les lignes isentropes ne croisent plus la tropopause (voir section [1.2.3](#)).

Les masses de CO , H_2O et CH_3CN et d'aérosols entre 20°S et 82°S et au-dessus de 380 K sont présentées en figure [4.4](#), de début décembre 2019 à fin mars 2020. La droite noire en pointillés indique la date des principaux pyroCb. Les masses de CO , H_2O et CH_3CN augmentent simultanément et nettement à la suite des pyroCb. L'injection de CO est estimée à $1.5 \pm 0.9 \text{ Tg}$, et celle de CH_3CN à $3.7 \pm 2.0 \text{ Gg}$. Le rapport de $\text{CH}_3\text{CN}/\text{CO}$ de masses injectées est de 0.0025, ce qui est cohérent avec les valeurs attendues pour des feux australiens [\[Guérette et al., 2018\]](#). La masse de H_2O injectée est quant à elle estimée à $27 \pm 10 \text{ Tg}$, ce qui correspond à environ 3% de la masse totale de H_2O dans le "*overworld*" dans ce domaine spatial.

Enfin, on observe sur la figure 4.4 que la masse d'aérosols dérivée des mesures de OMPS augmente progressivement, en comparaison avec l'évolution abrupte des masses de CO, H₂O et CH₃CN. Cette anomalie s'explique par le fonctionnement de OMPS, dont les mesures d'extinction saturent au-delà de 0.01 km⁻¹. Ces valeurs saturées sont donc exclues de nos estimations, et cela mène à une sous-estimation des masses injectées. Ce comportement est observé jusqu'à mi-février, puis les mesures cessent de saturer en raison de la dispersion des panaches injectés en stratosphère [Khaykin et al., 2020].

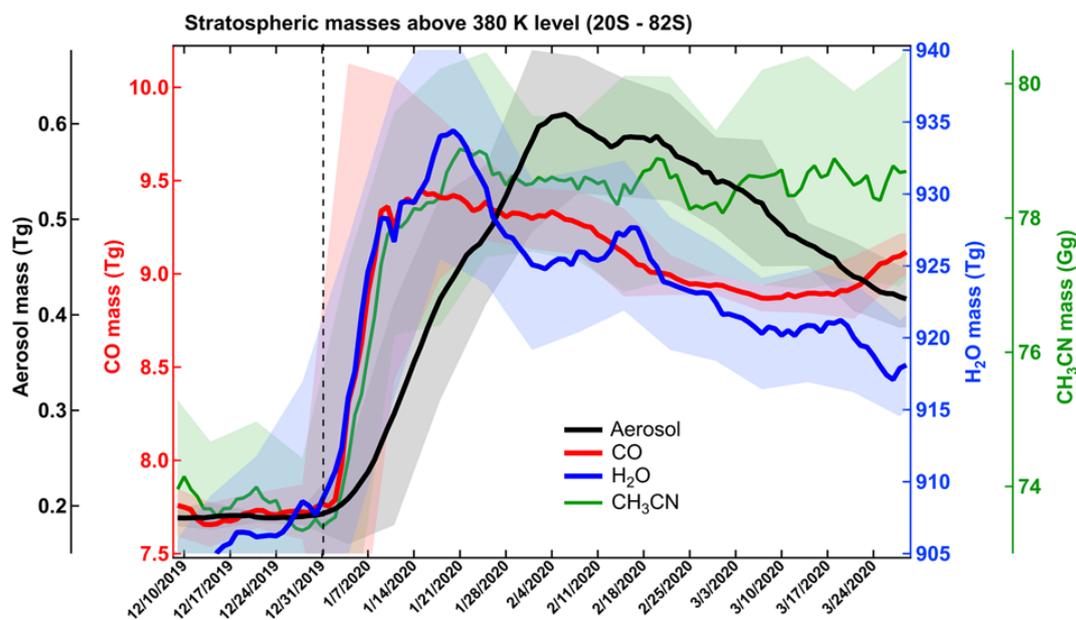


FIGURE 4.4 – Évolution temporelle des masses totales quotidiennes de CO, CH₃CN, H₂O et d'aérosols au-delà du niveau de température potentielle 380 K, entre 20°S et 82°S. Les masses sont calculées à partir des mesures de MLS et OMPS. Les courbes représentent les masses quotidiennes lissées sur une semaine, et les enveloppes équivalent à deux écart-types calculés sur une semaine. Figure publiée par [Khaykin et al., 2020].

À partir du 19 janvier 2020, un important signal d'aérosols est détecté à DDU, avec des valeurs de R₅₃₂ supérieures à 1.4. Ces signatures s'étendent sur un domaine d'altitude de plus en plus important, ce qui est cohérent avec les mesures de OMPS discutées en figure 4.3a. Le comportement des mesures d'extinction correspond à celui observé sur les valeurs de R₅₃₂ mesurées par le lidar, ce qui laisse penser que la couche d'aérosols possède un composition chimique homogène constante et donc un lidar ratio constant.

Les valeurs d'indice aérosol mesurées par OMI et les coefficients d'extinction à 675 nm mesurés par OMPS, présentés en figures 4.2 et 4.3 montrent des valeurs qui se détachent significativement du fond stratosphérique au début de l'année 2020 au sud de 30°S et autour de DDU. OMI et OMPS mesurent la charge en aérosols, mais afin d'affiner le suivi de l'évènement, il est pertinent de s'intéresser à la concentration en phase gazeuse de certains traceurs chimiques liés aux feux de forêt : CO et H₂O. Nous utilisons pour cela les mesures de MLS, qui a l'avantage de couvrir les hautes latitudes toute l'année. Nous avons calculé la concentration moyenne de ces deux espèces dans deux domaines : au-dessus de l'Antarctique (considéré comme le domaine au sud de 65°S) et au-dessus de

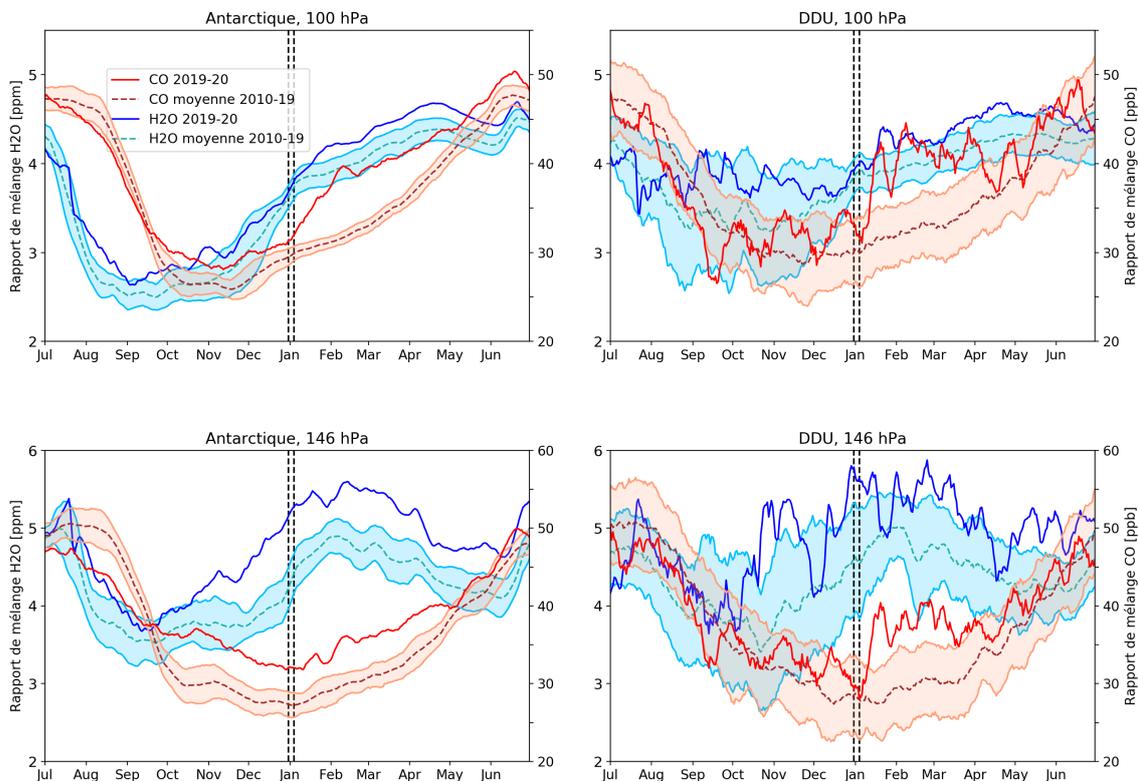


FIGURE 4.5 – Mesures de MLS de concentrations de H₂O (courbes bleues) et CO (courbes rouges) à 100 hPa (haut) et 146 hPa (bas) au-dessus de l'Antarctique (gauche) et de DDU (droite). La zone autour de DDU s'étend de 61.6°S à 71.6°S et de 130°E à 150°E. L'Antarctique est considérée comme étant la zone au sud de 65°S. L'axe x débute en juillet 2019 et s'achève en juin 2020. Les courbes pleines bleue et rouge représentent les concentrations en 2019-2020 et les courbes en pointillés la moyenne sur la période 2010-19. Les zones grisées représentent les écart-types. Les droites noires délimitent la période de pyroCb causés par le Black Summer australien.

DDU (61.6-71.6°S, 130-150°E), à deux niveaux de pression, 146 hPa et 100 hPa. Ces deux niveaux correspondent aux couches d'aérosols en basse stratosphère : selon la saison, 146 hPa se situe entre 12.5 et 13.5 km et 100 hPa entre 14.7 et 16 km. Sur ces deux domaines, nous avons comparé les concentrations de CO et H₂O de juillet à juin sur la période 2019-2020 avec la décennie passée. Ces concentrations sont présentées en figure 4.5.

Les concentrations de CO et H₂O surpassent les moyennes décennales en 2019-2020. À 146 hPa au-dessus de l'Antarctique (figure 4.5c), on observe que les concentrations de CO et H₂O augmentent nettement dès octobre 2019. Cette augmentation est cohérente avec les premières mesures acquises à DDU en novembre et montrées en figure 4.3c. À 100 hPa au-dessus de l'Antarctique (figure 4.5a), l'impact des pyroCb (délimités par les droites noires) est net. Les concentrations de CO de 2019-2020, déjà légèrement supérieures à la moyenne depuis septembre 2019, augmentent significativement début 2020. Le comportement des mesures de H₂O à 100 hPa est plus subtil,

mais ces valeurs se distinguent clairement de la moyenne décennale après les pyroCb.

Au-dessus de DDU, la variabilité des mesures est plus forte en raison de l'échantillonnage spatial plus faible au sein de ce domaine restreint. Néanmoins, l'impact des pyroCb se remarque sur les mesures de CO à 100 hPa et 146 hPa. Cette signature claire est visible à partir du 1er janvier sur les figures 4.5b et 4.5d. En raison de la taille du domaine centré autour de DDU et des incertitudes associées aux mesures de MLS aux niveaux de pression considérés, il est utile de s'appuyer sur des analyses complémentaires de transport de masses d'air pour statuer sur la présence de panaches de fumée au-dessus de DDU.

Les trajectoires inverses générées par Hysplit et présentées en figure 4.6 soutiennent la thèse d'une arrivée d'aérosols à DDU courant janvier. Cette figure montre que la masse d'air située à 13.5 km au-dessus de DDU le 19/01/2020 à 16 :00 UTC se trouvait 315 heures plus tôt, soit le 06/01/2020 à 13 :00 UTC, au-dessus de l'Amérique du Sud. La figure 4.6a est une carte des mesures de OMI d'indice aérosol UV moyennées entre le 6 et 7 janvier 2020. La partie de la trajectoire simulée correspondant à ces dates est colorée en vert. Cette zone présente en effet des valeurs de UV AI élevées. La figure 4.6b correspond aux mêmes données pour les 13 et 14 janvier 2020. La zone correspondant à la partie de la trajectoire surlignée en vert montre également des valeurs de UV AI supérieures à la moyenne, provenant directement des feux de forêt australiens.

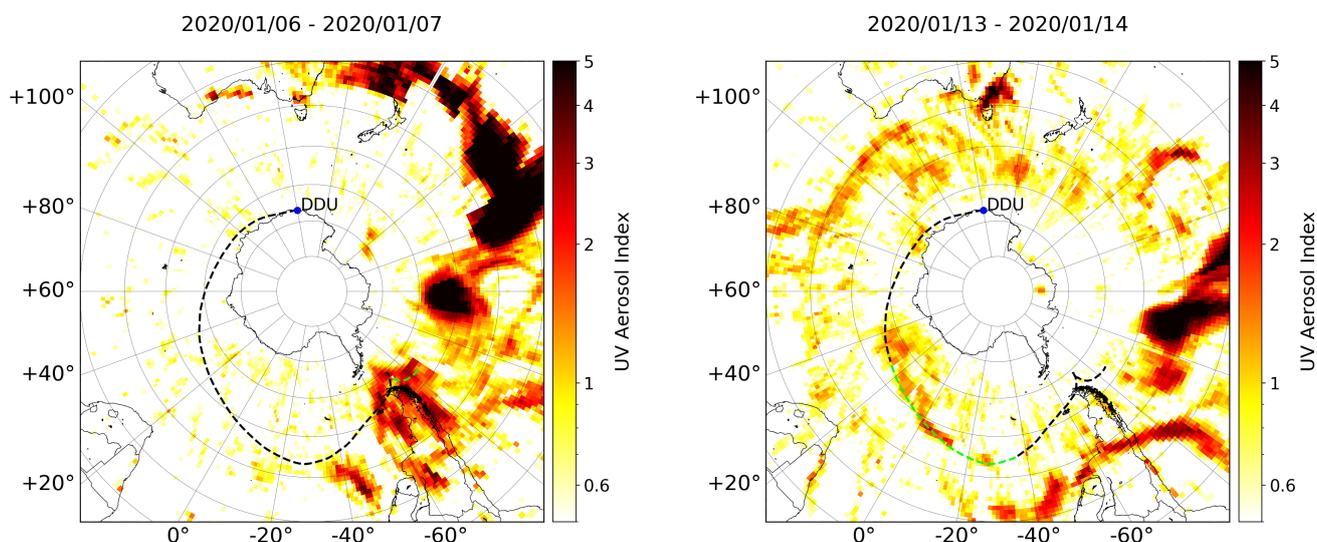


FIGURE 4.6 – Carte de l'indice aérosol UV mesuré par OMI moyenné les 6 et 7 janvier (a) et les 13 et 14 janvier 2020 (b). La trajectoire inverse générée par Hysplit d'une durée de 315 heures aboutissant à DDU le 19 janvier 2020 à 16 :00 UTC à 13.5 km est montrée en pointillés noirs. Les segments de la trajectoire correspondant aux dates concernées sont colorés en vert.

Le 19 janvier 2020, le lidar de DDU a enregistré une signature d'aérosols nette reliée aux feux australiens (voir figure 4.7a). Le jour de la mesure et l'altitude de la signature concordent avec les données d'extinction de OMPS/LP présentées en figure 4.3a et sont aussi cohérents avec les données OMI de la figure 4.2. Cette couche d'aérosols

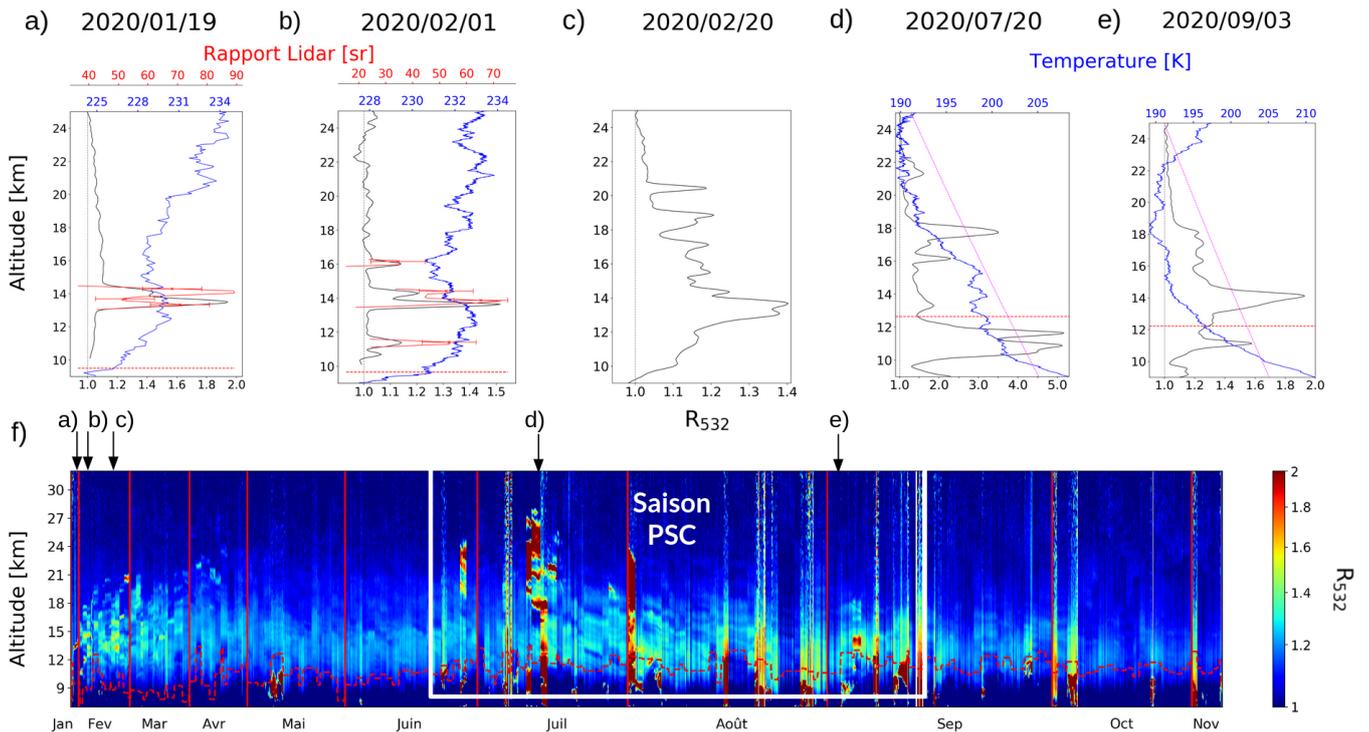


FIGURE 4.7 – Profils de R_{532} mesurés à DDU les 19/01/2020 (a), 01/02/2020 (b), 20/02/2020 (c), 20/07/2020 (d) et 03/09/2020 (e). Le lidar ratio est représenté en rouge en (a) et (b). Les températures mesurées par les radiosondes locales sont représentées en bleu lorsqu'elles sont disponibles ainsi que le seuil de température T_{NAT} en violet, en (d) et (e). Série temporelle de R_{532} du 12/01/2020 au 16/11/2020 à DDU (f). La courbe rouge en pointillés indique la position de tropopause dynamique. L'échelle temporelle n'est pas linéaire et dépend des disponibilités opérationnelles du lidar.

a été détectée entre 12.9 et 14.6 km et R_{532} atteint son maximum de 1.9 à 13.5 km. L'origine de la trajectoire montrée en figure 4.6 se situe à une altitude comprise entre 14 et 15.4 km, ce qui correspond à l'altitude de la couche détectée à Punta Arenas le 9 janvier reportée par Ohneiser et al. [2020]. Les auteurs mentionnent une signature d'aérosols mesurée le 5 janvier mais ne fournissent ni son altitude ni ses caractéristiques optiques, nous ne pouvons donc pas corréler cette mesure à nos observations.

À partir du 19 janvier, les mesures du lidar de DDU contiennent de nombreuses détections de fines couches d'aérosols entre 10 et 20 km. La série temporelle de ces mesures, montrée en figure 4.7f est cohérente avec le transport de panaches d'aérosols depuis les moyennes latitudes mentionné précédemment. L'identification d'aérosols issus de feux de biomasse avant le début de la saison de PSC est possible car il est attendu que les aérosols carbonés présentent une légère dépolarisation, ce qui n'est pas le cas des aérosols soufrés qui consistent en des gouttelettes de H_2SO_4/H_2O . Durant l'hiver et la saison des PSC, les signatures optiques des aérosols injectés par les feux australiens se mêlent à celles des couches de PSC, plus marquées en terme R_{532} et de δ_{532} . Néanmoins, de nombreuses mesures hivernales sans PSC comportent des signatures optiques qui ne correspondent pas aux valeurs attendues pour la couche d'aérosols soufrés de fond (c'est-à-dire $R_{532} > 1.1$).

La figure 4.7f montre que les valeurs de R_{532} décroissent avec le temps jusqu'au début de la saison des PSC

début juin. Les profils des figures 4.7a, b et c correspondent à des mesures acquises respectivement les 19/01/2020, 01/02/2020 et 20/02/2020 et illustrent plus précisément cette évolution. Les couches distinctes mesurées à des altitudes variées sur la série temporelle correspondent probablement à la fois à de nouveaux panaches fins arrivant des latitudes inférieures et à de plus anciens circulant autour du continent antarctique. Cette théorie est soutenue par de nombreuses trajectoires générées par Hysplit et présentées en figure 4.8. Les températures mesurées par les radiosondes lancées à DDU sont représentées en bleu sur les figures 4.7a et b et comportent des maxima locaux aux altitudes correspondant aux couches d'aérosols détectées au lidar, ce qui témoigne d'une capacité d'absorption typique des aérosols carbonés.

Les figures 4.7d et e sont des profils de R_{532} mesurés pendant l'hiver, respectivement les 20/07/2020 et 03/09/2020. Ces profils témoignent d'une présence potentielle de PSC. Les températures mesurées par les radiosondes sont incluses en bleu et permettent de discuter de la nature des couches diffusantes détectées, à l'aide du seuil de formation T_{NAT} en violet. Le 20/07/2020 (figure 4.7d), les couches situées à environ 13.5 et 16 km présentent des valeurs de R_{532} de 1.8 et 2.3 respectivement. Ces couches sont à des températures légèrement inférieures à T_{NAT} mais correspondent à des pics locaux de température, ce qui n'est pas attendu de couches de PSC. Malgré les fortes valeurs de R_{532} élevées pour des couches d'aérosols, il est difficile de conclure sur la nature de ces couches. La couche à 18 km est plus simple à analyser. Le pic de R_{532} à 3.5 et la température nettement sous T_{NAT} indique clairement une présence de PSC. Cette analyse est également applicable à la figure 4.7e, où la température largement inférieure à T_{NAT} tend à classer la couche détectée autour de 14 km parmi les PSC.

Les estimations de rapport lidar sont tracées en rouge sur les figures 4.7a et b et présentent des pics entre 70 et 90 sr au sein des panaches d'aérosols. Le temps d'intégration utilisé pour ces mesures est choisi de manière à maintenir un SNR suffisamment haut mais inférieur à 2 heures pour ne pas moyenniser les signaux d'aérosols avec ceux de ciel clair lorsque le panache d'aérosols sort du champ de vue du lidar. Ces valeurs de rapport lidar sont comparables à celles rapportées par [Ohneiser et al. \[2020\]](#) issues de mesures réalisées au Chili plusieurs semaines avant les mesures de DDU, à des latitudes inférieures. Les semaines de transport ne semblent donc pas avoir affecter le rapport lidar, mais il est délicat de pousser l'interprétation de ces mesures plus loin car l'estimation de rapports lidar en utilisant des temps d'intégration et des méthodes de pré-traitement différents mènent à une incertitude l'ordre de 15-20 sr, ce qui est significatif compte tenu des valeurs de rapport lidar attendues pour des aérosols soufrés, de l'ordre de 50 à 60 sr.

Toutefois, la restitution des propriétés optiques des aérosols détectés nous permet de tirer avantage de la haute résolution verticale du lidar sol (comparé aux capteurs passifs) afin d'accéder à la dynamique locale des panaches. La figure 4.9 fournit quatre exemples de sessions de mesures conduites en 2020. Les mesures présentées en figures 4.9a et b ont été acquises pendant l'été, respectivement les 06/02/2020 et 23/03/2020. Les figures 4.9c et d correspondent quant à elles à des mesures hivernales, obtenues les 26/07/2020 et 05/08/2020. Ces figures incluent également les températures mesurées par radiosondes (en bleu) et fournies par ERA5 (en vert), la température

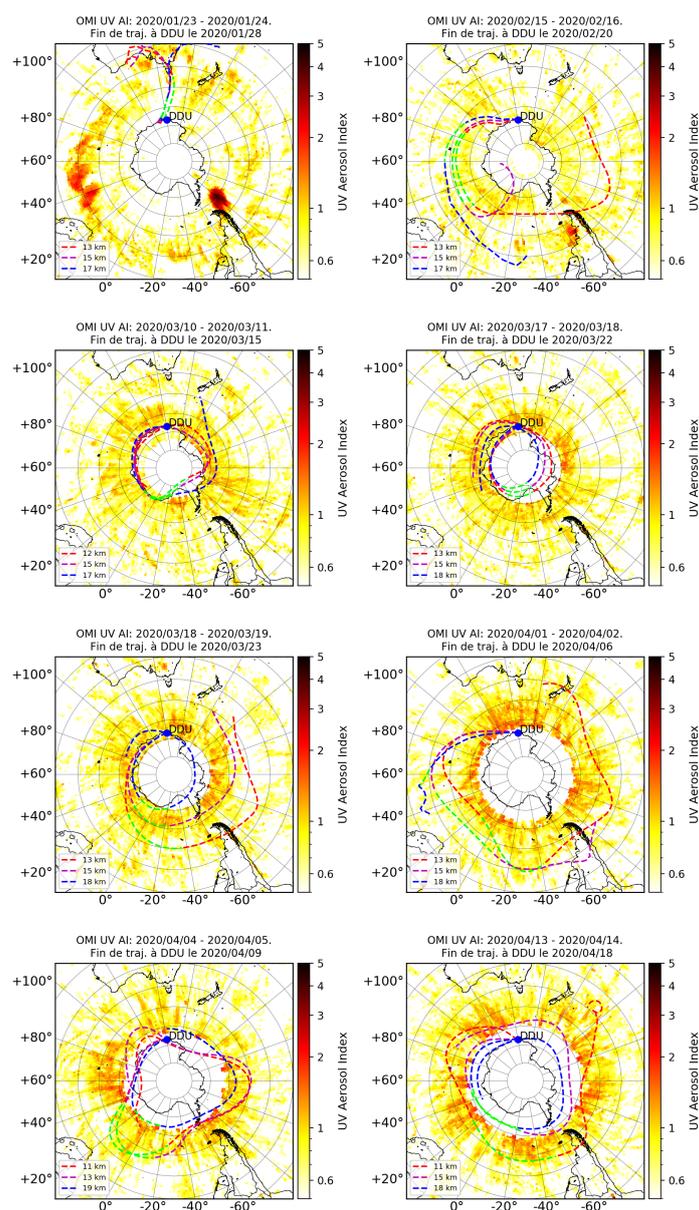


FIGURE 4.8 – Cartes d'indice aérosol UV de OMI et trajectoires inverses générées par Hysplit, d'une durée de 315 heures arrivant à DDU les 28/01/2020 (a), 20/02/2020 (b), 15/03/2020 (c), 22/03/2020 (d), 23/03/2020 (e), 06/04/2020 (f), 09/04/2020 (g) et 18/04/2020 (h). Pour chaque carte, les valeurs de UV AI sont moyennées entre 5 et 4 jours avant la fin de la trajectoire, et la partie de la trajectoire correspondant à ces jours est colorée en vert.

seuil T_{NAT} (en violet) et le rapport de dépolarisation (en rouge). La structure stratifiée des couches d'aérosols apparaît clairement, notamment dans les premières semaines de détection d'aérosols (figure 4.9a) bien qu'elle reste observable au fil des mois. Deux éléments émergent de la comparaison entre les figures 4.9a et b. Tout d'abord, les valeurs de R_{532} décroissent avec le temps : R_{532} atteint 1.54 le 06/02/2020 et chute à 1.31 le 23/03/2020. Cette tendance s'observe de manière régulière de janvier jusque mi-juin et le début de l'hiver. Par ailleurs, l'étendue

verticale des couches d'aérosols augmente lors des premières semaines. Enfin, les températures mesurées par les radiosondes les 06/02/2020 et 23/03/2020 présentent une anomalie positive locale aux altitudes des couches d'aérosols, en partie résolue par ERA5, qui est le signe des propriétés absorbantes des aérosols carbonés.

Durant l'hiver, il devient délicat de distinguer les couches d'aérosols des PSC comme cela a été mentionné précédemment. Avec des valeurs de R_{532} au dessus de 1.3 entre 13 et 16 km, les couches diffusantes des figures 4.9c et d pourraient être interprétées comme des PSC dominés par des cristaux de NAT, mais ces propriétés pourraient aussi correspondre à des aérosols [Deshler et al., 2003]. Toutefois les valeurs de dépolarisation inférieures à 5% indiquent davantage la présence d'aérosols, car les cristaux de NAT en équilibre présenteraient des rapports de dépolarisation élevés à l'inverse des aérosols âgés [Dahlkötter et al., 2014]. Les PSC de type STS pourraient encore concorder avec de telles propriétés. Sur la figure 4.9c, on note que les températures sont significativement supérieures à T_{NAT} jusqu'à environ 17 km, où la température passe légèrement sous ce seuil. L'absence de dépolarisation significative pourrait correspondre à un STS, mais ces PSC sont censés se former plusieurs degrés sous T_{NAT} . Nous pensons donc que ces couches sont composées d'aérosols.

Sur la figure 4.9d, les températures des radiosondes et de ERA5 sont nettement inférieures à T_{NAT} . Malheureusement, le ballon de la radiosonde a éclaté dès 16.5 km. Entre la tropopause et 18 km, la dépolarisation culmine à 2.7% à 14.3 km et 4% à 17 km, ce qui pourrait correspondre à un STS ou un NAT compte tenu des incertitudes sur la dépolarisation et de la présence d'un cirrus dépolarisant fortement à 10 km. Par ailleurs, les températures mesurées par la radiosonde présentent des maxima locaux à 11.25 et 13.5 km, ce qui n'est pas attendu en présence de PSC. Ces pics de température, bien qu'inférieurs à T_{NAT} , illustrent la difficulté de distinguer PSC et aérosols et nous empêchent de tirer de conclusion claire.

La distinction entre PSC et aérosols nécessiterait des analyses plus poussées et notamment la différenciation entre carbone et soufre, ce qui est hors de portée des données à la disposition de cette étude. Par ailleurs, les potentielles interactions entre aérosols carbonés et les différents types de PSC n'ont pas encore été explorées. La problématique scientifique des impacts d'une surcharge en aérosols sur la microphysique des PSC nous semble pertinente et nous considérons qu'il s'agit d'un point majeur mis en avant par cette étude.

En 2020, le premier PSC a été mesuré le 23 juin, et marque donc le début de la saison de PSC à DDU. La longueur de cette saison, qui est corrélée aux températures et à la persistance des champs de PSC, est un indicateur de la déplétion d'ozone stratosphérique. Des PSC sont détectés durant tout l'hiver, jusqu'à une dernière détection début septembre. Malgré une forte variabilité interannuelle, la durée de la saison de PSC 2020 est dans la moyenne de la dernière décennie. Cependant, les mesures de concentration d'ozone par sondes effectuées à DDU mi-octobre de 2006 à 2020 montrent clairement une destruction significative d'ozone en 2020, seulement comparable à celle mesurée en 2015. Ces profils de concentration d'ozone sont présentés en figure 4.10. En 2015, de nombreuses couches d'aérosols issues de l'éruption du Calbuco avaient été mesurées à DDU (les données sont disponibles sur les serveurs du NDACC). À titre de comparaison, le profil mesuré en 2006, année record de

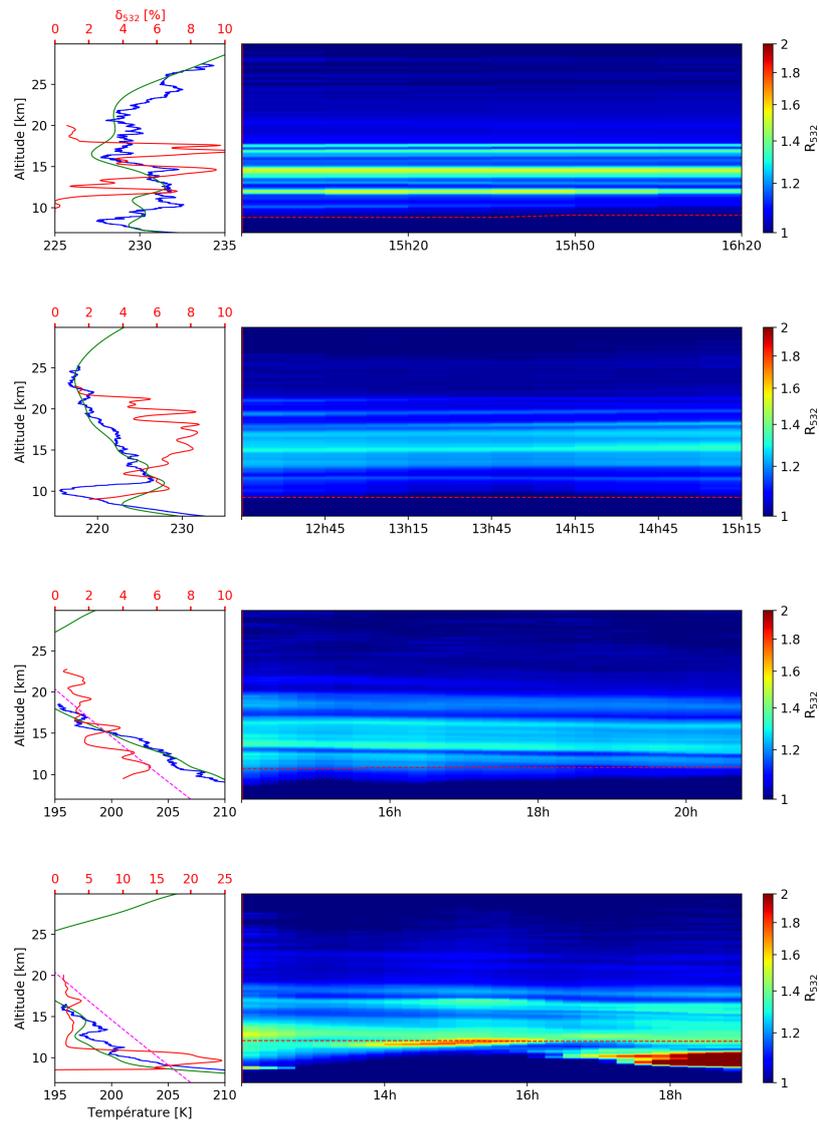


FIGURE 4.9 – Séries temporelles de R_{532} mesurées à DDU les 02/06/2020 (a), 23/03/2020 (b), 26/07/2020 (c) et 05/08/2020 (d). La droite rouge en pointillés indique la position de la tropopause. Sur la gauche, le profil de dépolarisation moyenné sur la session est présenté (courbe rouge). Les profils de température mesurés par les radiosondes de DDU et fournis par ERA5 sont inclus en bleu et vert, respectivement. Le seuil de température T_{NAT} est représenté en violet.

déplétion d’ozone dans l’hémisphère sud, est inclus en figure [4.10](#). Le motif et le domaine vertical du trou d’ozone ne ressemble pas à ceux observés en 2015 et 2020. Cette destruction d’ozone inhabituelle à mi-octobre à DDU concorde avec les résultats de [Yu et al. \[2021\]](#), qui ont modélisé l’impact des fumées du Black Summer sur l’ozone. Ce renforcement de la destruction d’ozone stratosphérique pourrait indiquer que les processus de nucléation aient été facilités par la présence d’une charge renforcée en aérosols, mais il ne s’agit là que de propositions préliminaires.

Bien que la présence de PSC complique le suivi des panaches d’aérosols, suffisamment de mesures ont été

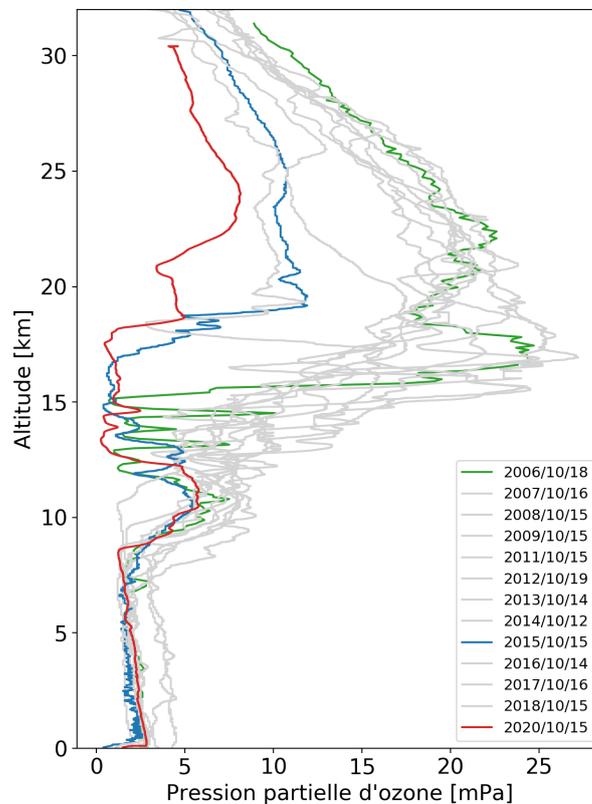


FIGURE 4.10 – Pression partielle d’ozone [mPa] mesurée par radiosondes lancées à DDU à mi-octobre, de 2006 à 2020. Les profils correspondant à 2006, 2015 et 2020 sont mis en évidence respectivement en vert, bleu et rouge.

acquises avant l’hiver pour proposer une caractérisation de ces aérosols mesurés à DDU. À partir des profils de R_{532} issus des mesures lidar, les couches correspondant aux aérosols ont été isolées. La figure 4.11a présente les valeurs de R_{532} de ces couches en fonction du temps et de leur rapport de dépolarisation. Le temps est exprimé en jour de l’année ("doy" - *day of year*) car dans le cas du Black Summer, ce doy correspond approximativement au nombre de jours écoulés depuis les principales injections stratosphériques [Khaykin et al., 2020]. La figure 4.11b propose l’évolution des valeurs de R_{532} en fonction de l’altitude à laquelle elles ont été mesurées et du mois de l’année, représenté en couleur.

Sur les figures 4.11a et b, on peut suivre les évolutions temporelles de R_{532} et de δ_{532} . Nos premières mesures d’aérosols, le 19 janvier, présentent des valeurs de R_{532} de 1.9 et de δ_{532} de 12%. En juin, avant le début de l’hiver, ces valeurs ont chuté à environ 1.2 et 6.8% respectivement. La figure 4.11b fournit l’évolution en altitude des couches d’aérosols. La première couche est détectée à 13.5 km. Puis, les aérosols se répandent en altitude en février et mars comme nous l’avons vu, avant de converger vers le bas de la stratosphère, entre 12 et 15 km en

mai et juin.

Il est remarquable que les valeurs de R_{532} observées de janvier à juin soient relativement faibles et comparables à celles de panaches issus d'une éruption volcanique faible à modérée, notamment après des semaines de transport (inférieures à environ 1,5 - [Khaykin et al. \[2018\]](#), [Bègue et al. \[2017\]](#)). Cependant, la stratosphère antarctique n'est pas sous l'influence d'un épisode volcanique récent à cette période et DDU est hors de portée des sources de pollutions anthropogéniques. Dans l'optique d'une augmentation de la fréquence d'occurrence des pyroCb liés à des feux de biomasse, il est intéressant de comparer les valeurs mesurées à DDU avec celles publiées dans la littérature pour des évènements comparables. La [tableau 4.1](#) rassemble les propriétés optiques des panaches de fumées publiées ces dernières années. Quatre évènements distincts sont pris en compte : les feux de 1998 dans la région de Northwest Territories, au Canada ([Fromm et al. \[2005\]](#)), le Black Saturday de 2009 en Australie ([Jumelet et al. \[2020\]](#)), les feux en Colombie Britannique en 2017 ([Khaykin et al. \[2018\]](#), [Baars et al. \[2019\]](#), [Hu et al. \[2019\]](#)) et enfin l'évènement étudié ici, le Black Summer 2020 ([Ohneiser et al. \[2020\]](#)).

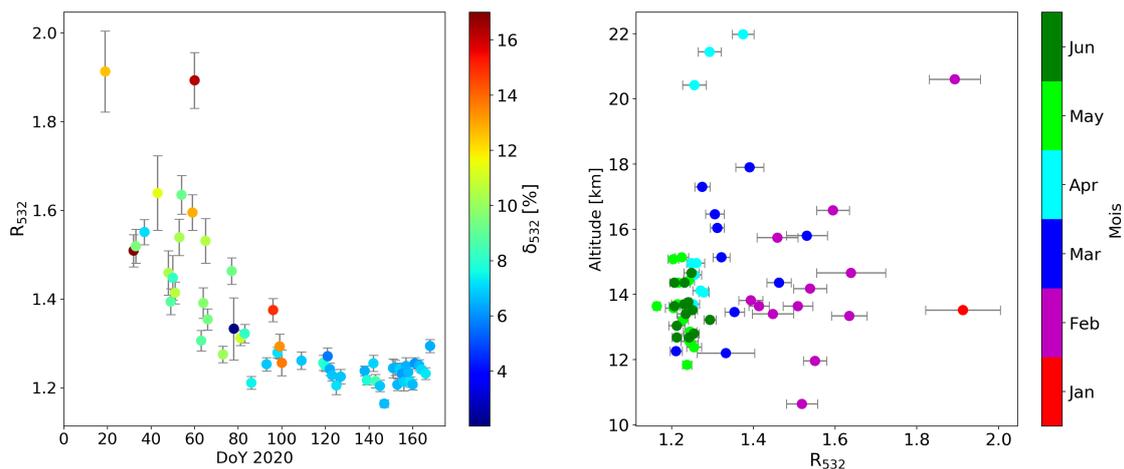


FIGURE 4.11 – (a) R_{532} des couches d'aérosols identifiées de janvier à juin 2020 en fonction du jour de l'année et de la dépolarisation, représentée en couleurs, en pourcentage. (b) R_{532} de ces mêmes couches d'aérosols en fonction de l'altitude. La couleur représente le mois de l'année. Les incertitudes sur les valeurs de R_{532} sont calculées à partir des erreurs sur le coefficient de rétrodiffusion en fonction du temps d'intégration et des conditions de fond de ciel, en considérant les autres sources d'incertitude constantes.

Du [tableau 4.1](#) ressort tout d'abord l'importante variabilité des valeurs de rapport et coefficient de rétrodiffusion. Cela n'est pas inattendu car ces données dépendent de plusieurs facteurs importants : la quantité de matériel injecté par l'évènement, la durée du transport et la distance entre les points d'injection et de mesure, le temps d'intégration des mesures lidar ou encore les méthodes d'inversion des mesures employées. Le [tableau 4.1](#) confirme que nos valeurs acquises à haute latitude, bien que dans la gamme de valeurs publiées, sont globalement plus faibles que celles mesurées à moyennes latitudes. La mesure de R_{532} très élevée reportée par [Khaykin et al. \[2018\]](#) a été décrite comme extrême. La conversion des valeurs de coefficient de rétrodiffusion en rapport de rétrodiffusion n'est

pas incluse dans le tableau 4.1 car l'impact important de la composante moléculaire nécessiterait de disposer de profils précis de température et de pression pour chaque cas reporté. De manière générale, la comparaison avec les données disponibles dans la littérature mets en évidence la durée exceptionnelle de mesures de ces aérosols à DDU. À notre connaissance, mesurer des aérosols issus de feux de biomasse à haute latitude sur une telle période est inédit. Il y a deux raisons principales à cela : premièrement l'ampleur majeure des injections causées par les pyroCb (Kablick III et al., 2020, Khaykin et al., 2020) est suffisante pour que les aérosols soient transportés jusqu'au pôle (voir figures 4.2 et 4.5) et deuxièmement, une fois à hautes latitudes, les trajectoires circulaires des masses d'air autour du pôle confinent les particules. À moyennes latitudes, les particules ne sont pas piégées de cette manière et les instruments sol ne peuvent pas les sonder pendant de telles périodes.

	Évènement	Âge [jours]	$\beta_{532,aer} * 10^{-3}$ [km ⁻¹ sr ⁻¹]	R ₅₃₂	δ_{532} [%]	LR [sr]	Site
Fromm 2005	Canada 1998	19	—	1.85	—	—	Sondrestromfjord, Groenland
Hu 2019	BC 2017	12	4	—	20	54	Lille, France
Hu 2019	BC 2017	16	2.2	—	—	58	Palaiseau, France
Khaykin 2018	BC 2017	17	—	8	—	—	OHP, France
Baars 2019	BC 2017	28	0.075	—	16	65	Limassol, Chypre
Jumelet 2020	Austr. 2009	22	—	1.4	—	—	DDU, Terre Adélie
Jumelet 2020	Austr. 2009	24	—	1.55	—	—	DDU, Terre Adélie
Ohneiser 2020	Austr. 2020	9	1.4	—	15	76	Punta Arenas, Chili
Tencé 2021	Austr. 2020	19	0.25	1.91	12.6	87	DDU, Terre Adélie
Tencé 2021	Austr. 2020	32	0.135	1.51	17	73	DDU, Terre Adélie
Tencé 2021	Austr. 2020	120	0.057	1.25	7	—	DDU, Terre Adélie

TABLE 4.1 – Propriétés optiques des aérosols stratosphériques issus de feux de biomasse reportées dans la littérature. BC 2017 correspond aux feux en Colombie Britannique en 2017, et Austr. 2009 au Black Saturday 2009 en Australie. L'âge des aérosols est le temps écoulé, en jours, depuis l'injection stratosphérique. $\beta_{532,aer}$ est le coefficient de rétrodiffusion particulaire à 532 nm, en km⁻¹sr⁻¹. δ_{532} est le rapport de dépolarisation et LR est le rapport lidar.

4.5 Conclusion

La saison des feux 2019-2020 en Australie est exceptionnelle autant par sa durée que son ampleur. Elle a entraîné la formation de nombreux pyroCb qui ont injecté une quantité inédite d'aérosols carbonés dans la stratosphère australe. Dans cette étude, nous avons caractérisé les panaches de fumée qui ont atteint la région antarctique à l'aide d'un ensemble de mesures satellites (OMI, OMPS et MLS) et d'une série unique de mesures lidar acquises à la station française antarctique DDU couvrant la durée de vie de ces aérosols dans la stratosphère antarctique jusqu'à ce qu'ils sédimentent en troposphère ou ne soient plus distinguables des aérosols de fond. De mi-janvier à octobre 2020 en passant par la saison des PSC, le lidar de DDU a constamment détecté des signatures d'aérosols nettement distinctes de celles des aérosols soufrés de fond. La combinaison de mesures d'indice aérosol UV (OMI),

de coefficient d'extinction (OMPS) et de simulations de trajectoires inverses (Hysplit) a permis de confirmer que ces aérosols correspondent à ceux injectés par les feux de forêt australiens.

Les mesures reportées ici constituent une contribution importante à la caractérisation optiques des aérosols de fumée et sont, à notre connaissance, la plus longue série temporelle d'observations de tels aérosols en stratosphère disponible. Nous soulignons la persistance de ces aérosols dans la stratosphère australe, ce qui est déjà établi dans le cas d'évènements volcaniques. De plus amples analyses sont nécessaires afin de pouvoir distinguer aérosols soufrés et carbonés ou encore couches d'aérosols et PSC.

Examiner plus profondément les interactions microphysiques entre les différents types d'aérosols et la nucléation des particules de PSC est hors du cadre de cette étude. Toutefois, nous reportons une déplétion d'ozone inhabituelle en 2020, supérieure à la moyenne décennale et seulement comparable à l'année 2015, qui avait été marquée par de nombreuses détections de couches d'aérosols d'origine volcanique à DDU.

Alors que les mesures satellites sont aujourd'hui nécessaires pour statuer sur la nature et l'origine de panaches d'aérosols, les incertitudes associées à ces mesures sont encore importantes et nous pensons que les mesures basées au sol peuvent fournir un point de vue davantage qualitatif sur les propriétés optiques de ces particules. C'est notamment le cas à hautes latitudes où la disponibilité des données spatiales est réduite, ces données sont plus rarement validées qu'ailleurs sur Terre, et les campagnes in-situ restent rares, qu'il s'agisse de campagne de radiosondes ou de comptage de particules. Maintenir les stations sol et les capacités instrumentales à hautes latitudes est primordial car les propriétés optiques des couches d'aérosols étudiées sont proches des seuils de sensibilité des instruments spatiaux, ce qui peut les rendre invisibles ou du moins complique leur suivi. Des capacités multispectrales combinées aux hautes résolutions verticale et temporelle de la mesure lidar nous permettraient d'accéder aux paramètres microphysiques de ces couches diffusantes et constitueraient selon nous un atout majeur dans le domaine des aérosols stratosphériques.

Enfin, dans le contexte global du changement climatique, les prérequis aux épisodes de feux majeurs comparables au Black Summer australien seront plus fréquemment réunis (Hennessy, 2006; Lucas et al., 2007). Cela renforce l'intérêt scientifique des recherches portant sur les impacts globaux des aérosols issus de feux de biomasse, notamment à hautes latitudes où les aérosols stratosphériques restent confinés au-dessus de l'Antarctique. La sédimentation de ces aérosols pourrait dans une certaine mesure modifier l'albédo des régions enneigées et couvertes de glace. Si l'on considère de longues échelles de temps, de tels évènements peuvent avoir eu d'importantes conséquences climatiques et pourraient contribuer à expliquer les fontes rapides de calottes glaciaires. Enfin, notre étude met en avant les processus impliqués dans le transport de panaches fins d'aérosols vers les hautes latitudes qui ne sont pas adéquatement pris en compte dans les modèles, soit car ils prennent place à une échelle trop fine pour ces modèles, soit parce qu'ils n'y sont pas paramétrés. L'inclusion de ces processus dans nos modèles pourrait avoir d'importants impacts sur les conditions atmosphériques et de surface, compte tenu de l'échelle de ces évènements.

Résumé du chapitre 4

- L'épisode majeur de feux de forêt survenu en Australie en 2019 / 2020 a injecté une quantité considérable d'aérosols en stratosphère, dont une partie a été transportée jusqu'aux hautes latitudes australes. Le lidar de DDU a détecté des signatures d'aérosols émis par ces feux de janvier à octobre 2020, une durée inédite pour des aérosols carbonés mesurés par un instrument sol. Des mesures satellites d'indice aérosol (OMI), d'extinction (OMPS) et de concentrations de H₂O et CO ainsi que des simulations de trajectoires réalisées avec Hysplit ont confirmé le lien entre les mesures acquises à DDU et les feux australiens.
- Les masses de H₂O, CO, CH₃CN et d'aérosols injectées par les feux australiens ont été calculées à l'aide des mesures des satellites MLS et OMPS.
- Les propriétés optiques de ces aérosols ainsi que leur évolution temporelle ont été présentées, en terme de rapport de rétrodiffusion, de dépolarisation et de rapport lidar.
- Les aérosols carbonés ont été observés au sein du vortex polaire, et le défi instrumental posé par la délicate spéciation entre couches d'aérosols et de PSC a été mis en évidence et discuté.
- Un comparatif des mesures d'ozone réalisées par sondes en fin d'hiver à DDU a été présenté, de 2006 à 2020. Celui-ci met en évidence les fortes destructions d'ozone constatées en 2020 et en 2015, année marquée par la présence d'une surcharge en aérosols stratosphériques due à l'éruption du volcan Calbuco. Cela pose la question de l'interaction entre les panaches d'aérosols observés et les processus de destruction d'ozone, directement ou indirectement, par une influence des aérosols sur la formation des PSC.

Chapitre 5

Jouvence du lidar de DDU et restitution en taille de populations d'aérosols volcaniques

5.1 Étude de processus : détections de panaches d'aérosols à DDU en novembre 2021

Dans cette section, nous revenons sur les mesures de panaches d'aérosols réalisées à DDU du 4 au 8 novembre 2019. Ces mesures ont déjà été rapidement abordées au chapitre précédent, en section 4.4. Ce cas d'étude est symptomatique des questions que posent la présence significative d'aérosols carbonés en stratosphère à hautes latitudes récemment mise en évidence. L'objectif de cette section est de montrer que malgré la gamme spectrale et le nombre des mesures disponibles sur les missions spatiales en activité, il se peut que la caractérisation d'un panache demande une analyse fine de l'ensemble. Comme cela a été précédemment mentionné, les conséquences de la présence croissante de carbone en stratosphère sont aujourd'hui largement inconnues. Étudier les conséquences des injections stratosphériques d'aérosols et notamment de celles causées par les feux de biomasse demande d'être capable de différencier les panaches d'aérosols mesurés selon leur nature. Les propriétés optiques accessibles avec le lidar de DDU (R_{532} et δ_{532}) ne permettent pas la spéciation entre espèces carbonées et soufrées. En effet, à l'exception des premiers jours voire des premières semaines durant lesquelles les aérosols carbonés présentent une dépolarisation non nulle qui les différencie de leurs homologues soufrés, leurs propriétés optiques se recoupent. Ainsi, il faut faire appel à d'autres mesures, données ou simulations pour déterminer la nature de couches d'aérosols détectées à DDU.

Pour rappel, les mesures de panaches d'aérosols dont il est question ici ont été présentées en section 4.4. Du 4 au 8 novembre 2019, le lidar de DDU a enregistré une signature optique cohérente, c'est-à-dire conservant une altitude et des propriétés optiques stables. Ce panache d'aérosol présente un coefficient de rétrodiffusion R_{532} entre 1.2 et 1.25, une épaisseur d'environ 500 m et se situe à 15.5 km. La figure 5.1 rappelle la série temporelle de R_{532} déjà présentée en section 4.4. Nous avons initialement interprété ces panaches comme provenant d'injections précoces causées par les feux australiens du Black Summer, qui faisaient rage depuis déjà plusieurs mois. Toutefois, les études portant sur cet évènement n'ont pas reporté d'activité de pyroCb avant fin décembre 2019 (Kablíck III et al., 2020, Khaykin et al., 2020). Par ailleurs, d'autres évènements ayant impacté la stratosphère australe à cette période auraient pu être détectés à DDU début novembre 2019.

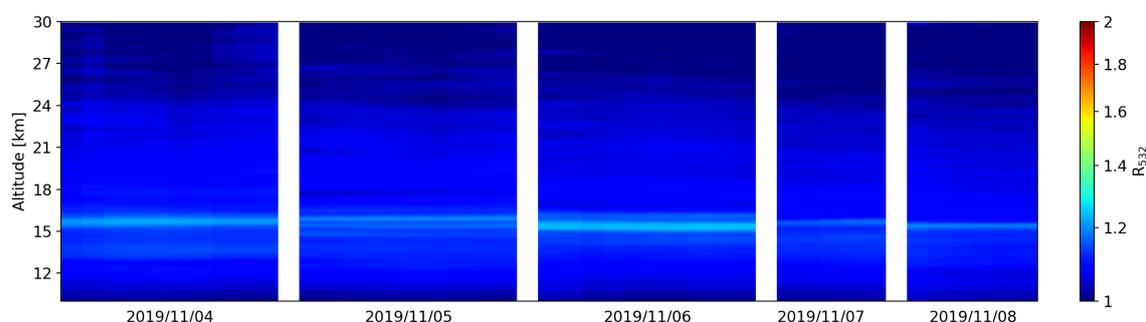


FIGURE 5.1 – Série temporelle de R_{532} mesurée par le lidar de DDU du 4 au 8 novembre 2019.

Un de ces évènements est l'éruption, ou plutôt les deux éruptions du volcan Ulawun en Papouasie Nouvelle-Guinée (5.05°S, 151.3°E). Ces éruptions se sont produites les 26 juin et 3 août 2019 et ont injecté 0.14 Tg et 0.30 Tg d'aérosols soufrés en stratosphère, à 16-17 km et 17-18 km respectivement, selon Kloss et al. (2021). Dans le cadre de leur étude sur les conséquences de ces éruptions, Kloss et al. (2021) ont publié une figure comparant les mesures d'épaisseur optique des aérosols stratosphérique (sAOD) à 675 nm de OMPS avec des simulations de sAOD à 550 nm réalisées avec le modèle WACCM (pour *Whole Atmosphere Community Climate Model*) basées sur les quantités d'aérosols injectées. Ces graphes sont reproduits en figure 5.2. Ces figures font apparaître de fortes valeurs de sAOD dans la stratosphère de l'hémisphère nord, qui correspondent à l'éruption plus conséquente du volcan japonais Raikoke, également au coeur de l'étude de Kloss et al. (2021). Surtout, la figure 5.2 met en évidence le transport des aérosols injectés par la seconde éruption du Ulawun vers les hautes latitudes. Les mesures de OMPS en figure 5.2a mais aussi la simulation prenant seulement en compte le volcan Ulawun en figure 5.2c font état de ce transport, et l'arrivée du panache aux latitudes de DDU correspond par ailleurs aux détections d'aérosols à DDU, c'est-à-dire début novembre 2019. Enfin, on peut noter sur la figure 5.2a les fortes valeurs associées aux injections du Black Summer.

L'étude de Kloss et al. (2021) montre donc que les aérosols soufrés injectés en stratosphère par les éruptions du

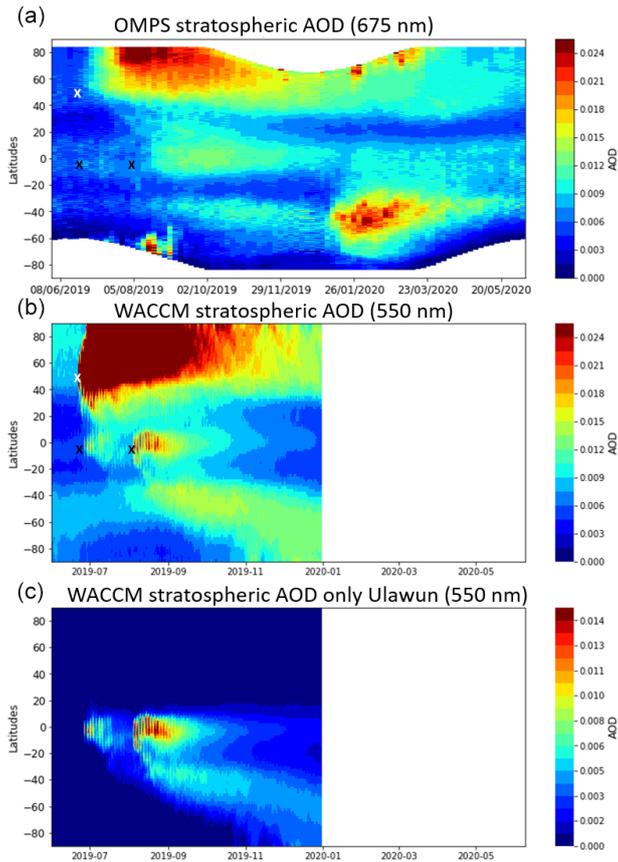


FIGURE 5.2 – Distribution globale des valeurs zonales d'épaisseur optique des aérosols stratosphériques (sAOD) en fonction du temps et de la latitude. (a) Pour les mesures de OMPS et (b) pour la colonne stratosphérique intégrée des simulations de WACCM correspondant aux éruptions du Ulawun et du Raikoke et (c) aux seules éruptions du Ulawun. Les croix indiquent la localisation et la date des éruptions, en blanc pour le Raikoke et noir pour Ulawun. Le sAOD simulé par WACCM correspond au soufre, c'est-à-dire que la condensation de l'eau n'est pas prise en compte afin d'éliminer l'impact des PSC dans l'hémisphère hivernal, qui risquerait de masquer la signature des panaches au niveau des pôles. Figure reproduite de [Kloss et al. \[2021\]](#).

Ulawun, et notamment la seconde, ont été transportés jusqu'à hautes latitudes et s'y situaient début novembre 2019. Les panaches détectés à DDU à cette période pourraient donc être d'origine volcanique. Toutefois, les mesures et simulations publiées par [Kloss et al. \[2021\]](#) sont des moyennes zonales : les aérosols ont en effet été transportés à hautes latitudes mais leur présence dans la région de DDU n'est pas documentée. Afin de poursuivre notre investigation, nous pouvons nous appuyer sur les mesures de MLS présentées en figure [4.5](#). Comme cela a été mentionné dans la discussion associée à cette figure en section [4.4](#), la concentration de CO augmente en basse stratosphère dans la région antarctique dès octobre 2019. Cette augmentation est davantage marquée à 146 hPa mais est également notable à 100 hPa. De plus, la concentration de CO augmente elle aussi début novembre dans la région de DDU, à 100 et 146 hPa, même si elle reste dans la variabilité décennale. Les concentrations de CO plaident clairement pour la thèse d'une origine liée à des feux de biomasse pour les panaches détectés à DDU. Une éruption volcanique n'est pas censée impacter la concentration de CO stratosphérique. Il pourrait donc s'agir

d'injections stratosphériques précoces liées aux feux australiens ou à un autre épisode de feux.

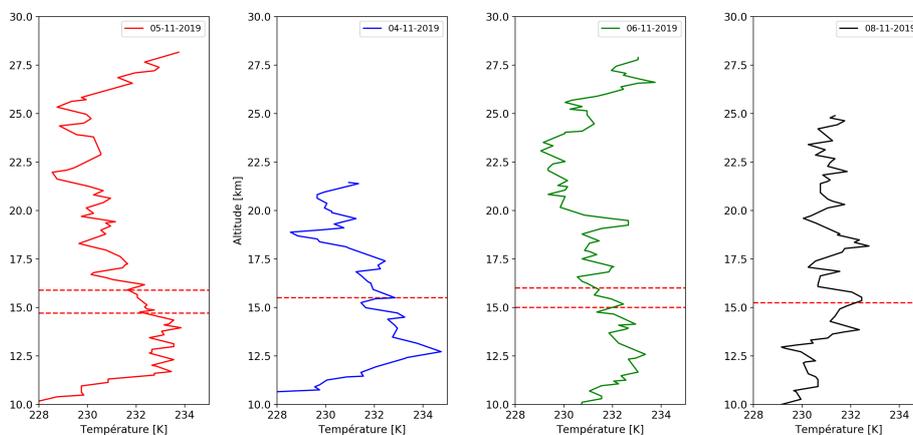


FIGURE 5.3 – Profils des températures mesurées par les radiosondes lancées à DDU les 04/11/2019 (a), 05/11/2019 (b), 06/11/2019 (c) et 08/11/2019 (d). Aucune sonde n'a pu être lancée le 07/11/2019. Les lignes rouges hachurées indiquent la position des couches d'aérosols détectées par le lidar.

Les radiosondages météorologiques à DDU sont une autre source pertinente de données à considérer. Les aérosols carbonés sont davantage absorbants que leurs homologues soufrés. Ainsi, il est attendu que leur présence cause une augmentation locale de la température. La figure 5.3 présente les mesures des radiosondes lancées à DDU les 4, 5, 6 et 8 novembre 2019. Aucune donnée n'est disponible pour le 7 novembre. La position des panaches d'aérosols est indiquée par les lignes rouges hachurées. Sur la figure 5.3, on semble observer de légères augmentations de la température au niveau de ces couches. Cependant, le niveau de bruit des mesures est assez fort. De plus, les aérosols soufrés ont également des propriétés absorbantes, celles-ci sont simplement censées être moins importantes que pour les espèces carbonées. La finesse des panaches d'aérosols discutés ici explique probablement le faible impact observé sur les températures. La présence de pics locaux de température semble indiquer la nature carbonée des aérosols analysés, cependant ces pics sont trop légers pour permettre de conclure avec certitude à partir de ces données seules.

D'un point de vue plus global, les mesures d'index aérosol UV fournies par OMI peuvent donner des informations sur l'origine d'un panache en suivant son transport au fil du temps. Nous avons donc produit des cartes de cet index aérosol UV pour les semaines et mois précédant les détections de début novembre. Sur ces cartes, présentées en figure 5.4, nous ne sommes pas parvenus à identifier les injections causées par les éruptions du Ulawun. Cela peut s'expliquer par l'ampleur relativement faible de ces injections. En revanche, nous remarquons des signatures d'aérosols en provenance du sud de l'Afrique de l'Ouest de juin à octobre 2019, et ces aérosols semblent être transportés vers les hautes latitudes. L'Afrique de l'Ouest est une région où les feux de forêt sont fréquents, et aucune éruption volcanique n'a été enregistrée à cette période dans cette zone. Ces aérosols seraient

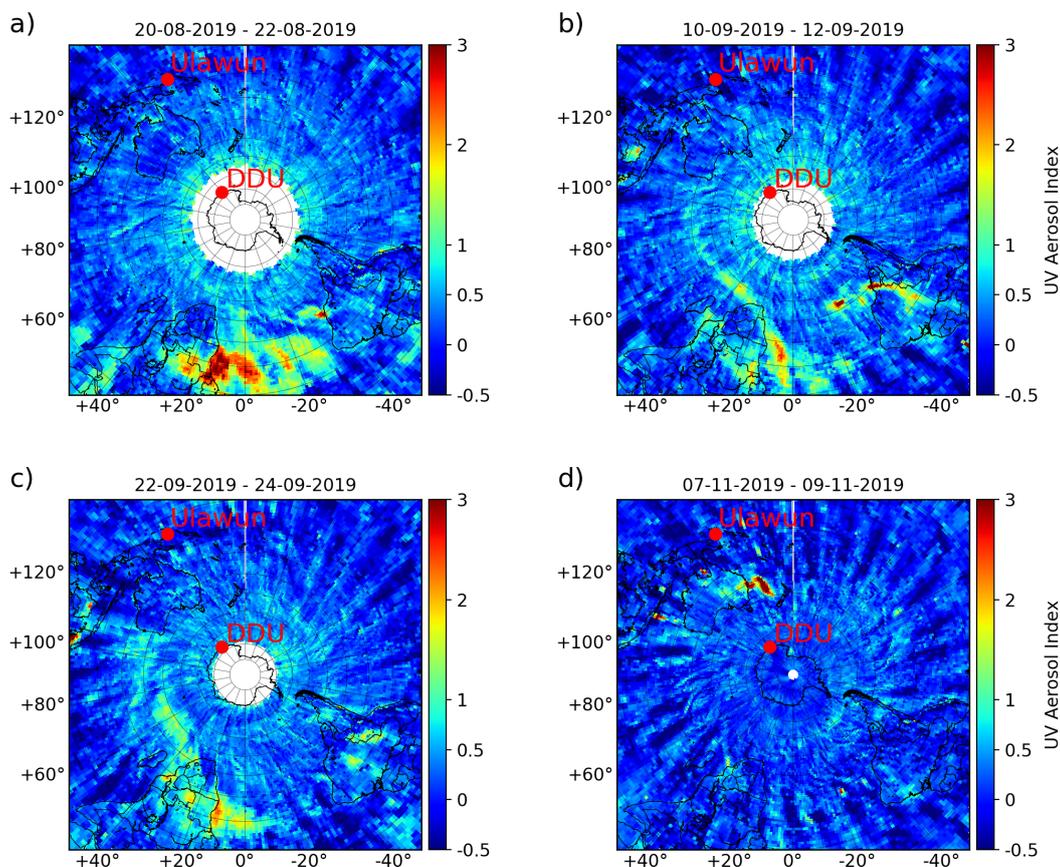


FIGURE 5.4 – Cartes des mesures d'index aérosol UV fournies par OMI, moyennées sur deux jours, pour les 20/08/2019 (a), 10/09/2019 (b), 22/09/2019 (c) et 07/11/2019 (d). Les positions du volcan Ulawun et de DDU sont indiquées par des points rouges.

donc d'origine carbonée, et pourraient expliquer les mesures de DDU ainsi que les concentrations de CO fournies par MLS. La figure 5.4d montre également que les feux australiens ont émis des panaches transportés sur d'importantes distances dès le début du mois de novembre 2019. Bien que les mesures de la figure 5.4 ne puissent pas correspondre aux mesures de DDU, elles montrent que ces feux ont émis des aérosols carbonés avant les injections de la fin d'année. Malheureusement, l'inconvénient de ces mesures de UV AI est qu'elles ne fournissent pas d'information sur l'altitude des aérosols détectés. Ainsi, nous ne pouvons pas confirmer avec ces cartes que les panaches observés étaient en stratosphère. Enfin, des trajectoires inverses de masses d'air ont été générées avec Hysplit afin de chercher l'origine des panaches détectés à DDU, mais elles n'ont pas permis de conclure.

Pour résumer, l'origine des aérosols sondés par le lidar à DDU entre le 4 et le 8 novembre 2019 reste incertaine, et ce malgré la riche gamme de mesures déployées. Cette étude de processus est intéressante pour souligner le

besoin en capacités instrumentales susceptibles de déterminer la nature de panaches d'aérosols stratosphériques. Dans ce cas, nous considérons que l'hypothèse la plus probable est que les aérosols proviennent de feux de forêt en Afrique de l'Ouest et qu'ils aient été émis dans l'atmosphère entre août et octobre 2019. Cela semble être la meilleure piste étant données les concentrations de CO mesurées par MLS, non compatibles avec une source volcanique, et les cartes d'index aérosol UV de OMI. Cependant, des recherches approfondies seraient nécessaires pour conclure avec certitude sur ce cas d'étude.

5.2 Campagne d'été et jouvence du lidar à Dumont d'Urville

Les sections précédentes ont mis en évidence l'importance de maintenir des observatoires atmosphériques à hautes latitudes où la couverture est réduite, ainsi que le besoin d'améliorer nos capacités instrumentales pour approfondir l'étude des aérosols stratosphériques. Les injections massives d'aérosols carbonés récemment constatées ainsi que les divers changements climatiques en cours impactent les processus clés de la stratosphère, sa composition ou encore sa température. La multiplication des instruments spatiaux ces dernières décennies a contribué à améliorer nos capacités de surveillance et d'étude. La section précédente a toutefois mis en évidence au moyen d'un exemple que la panoplie instrumentale actuelle n'est pas toujours suffisante et adaptée aux récentes questions posées par la présence d'une quantité significative de carbone en stratosphère. Dans ce contexte, nous avons eu au cours de ma thèse la possibilité de changer la source laser du lidar de DDU. Cette jouvence répond à deux besoins principaux : le nécessaire renouvellement d'un sous-système central du lidar et l'enrichissement de ses capacités de mesure.

Le laser choisi est le modèle Qsmart 850 (ci-après, Qsmart) proposé par le constructeur Lumibird (anciennement Quantel), dont une photographie est fournie en figure 5.5. Il présente tout d'abord une puissance supérieure en émission par rapport au laser précédent, installé en 2001 (modèle CFR-400, ci-après CFR, également produit par Quantel). Il permet surtout d'émettre simultanément à trois longueurs d'onde, à savoir 355, 532 et 1064 nm. Cet aspect multispectral offre de nombreuses possibilités comme nous allons le montrer dans ce chapitre. Après de premières séries de tests et de calibration en laboratoire, une campagne a été réalisée à DDU début 2022 afin d'installer ce nouveau laser et de l'intégrer au système existant, avec en ligne de mire l'acquisition de mesures d'aérosols, de fond ou de panaches éventuels.

Cette campagne avait pour objectif principal l'installation, la calibration et la mise en service de la nouvelle source laser. Elle a également permis de faire de précieux tests et réglages sur le système lidar complet. La richesse d'un instrument sondant l'atmosphère d'une région par ailleurs très peu couverte par les réseaux de mesures internationaux en est également une forte contrainte opérationnelle. Se rendre sur site pour effectuer des essais instrumentaux ou apporter des modifications à la configuration en place est un luxe et une opportunité rare en comparaison aux instruments basés dans des régions habitées du globe. De plus, la logistique impose bien

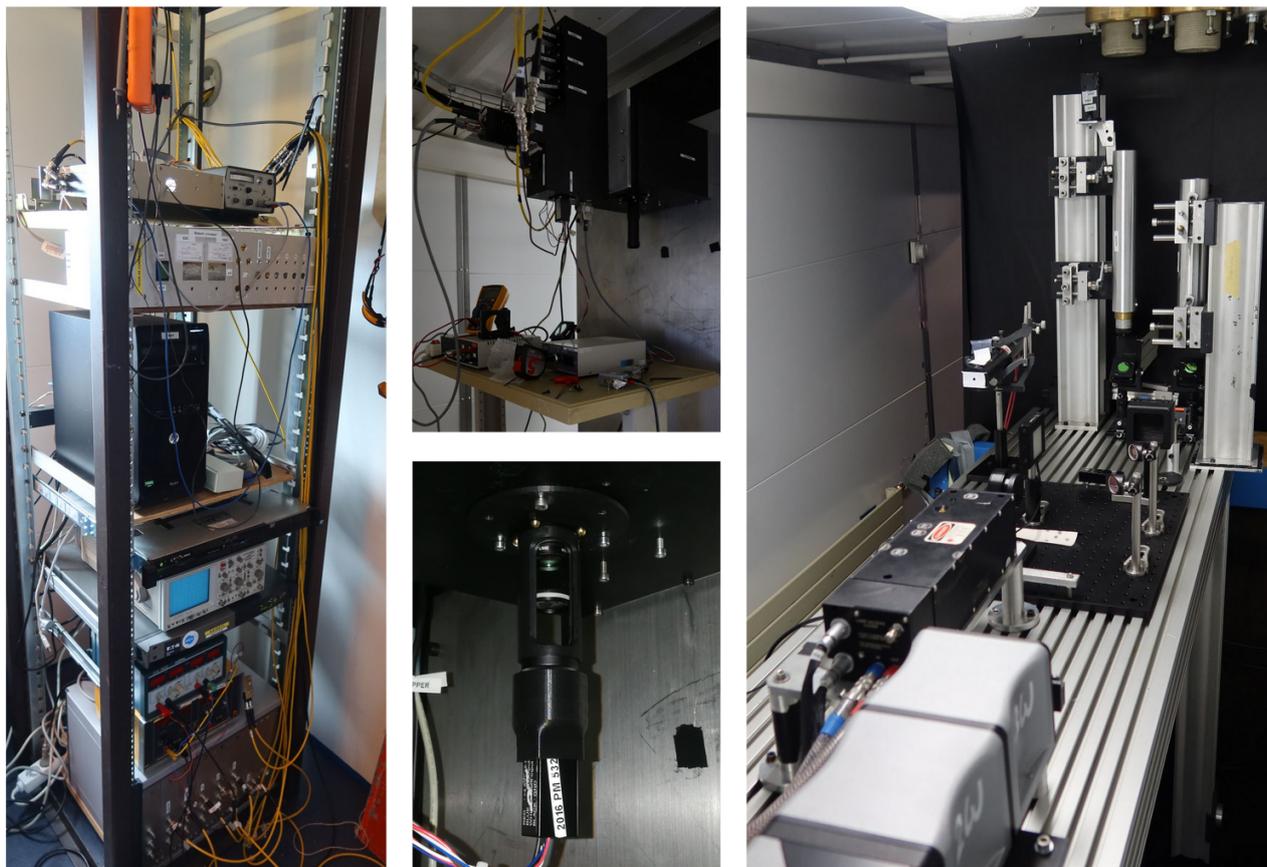


FIGURE 5.5 – Photographies du lidar de DDU. À droite, la partie émission avec le banc optique. La tête laser noire à gauche est celle du CFR-400, la grise à droite est celle du Qsmart-850 nouvellement installé. En bout de banc, des miroirs renvoient le faisceau laser vers les hublots situés au plafond. Avant d’atteindre le hublot, le faisceau passe par un système afocal afin de diminuer sa divergence et ainsi améliorer le niveau de signal obtenu en stratosphère. Le télescope, non montré ici, se situe dans la cage noire derrière le banc optique. Au milieu en haut, se situe le boîtier comportant les optiques séparant les différentes composantes du faisceau en sortie du télescope. Sur les bords de ce boîtier sont fixés les détecteurs (PM et APD). La voie UV temporaire en réception installée durant la campagne est présentée sur la photo au milieu en bas. La photo à gauche montre le rack contenant les différentes alimentations, les cartes électroniques d’adaptation du signal et de commande du laser ainsi que la baie d’acquisition des mesures. Ces photos ont été prises en 2022 lors de la campagne à DDU.

souvent une planification s’étalant de 6 mois à plusieurs années suivant l’ampleur des opérations que l’on souhaite y déployer. Le détail de ces interventions sur l’instrument n’a pas sa place dans ce manuscrit, mais il est important de noter qu’elles constituent une part importante de la campagne. Cette mission m’a également permis d’acquérir une connaissance approfondie et pratique des enjeux et problématiques caractéristiques de l’opération d’un lidar stratosphérique. Ce point est particulièrement important, d’autant plus dans le contexte d’une station antarctique.

Dans cette section seront simplement mentionnées les étapes importantes de cette mission, celles qui ont des conséquences immédiates sur les futures mesures. Tout d’abord, présentons plus en détail le Qsmart. En configuration monochromatique, ce laser émet à une puissance allant jusqu’à 850 mJ dans l’infrarouge, à 1064 nm. À son extrémité, sont installés des modules doubleur et tripleur de fréquence qui permettent de diviser respectivement

par deux et trois la longueur d'onde du signal. Ainsi, le faisceau émis contient trois longueurs d'onde : 355, 532 et 1064 nm. Les modules générateurs d'harmonique sont constitués de cristaux non linéaires dont le comportement est notamment contrôlé par la température. La température du cristal, qui peut être réglée entre 45°C et 55°C, conditionne la répartition en puissance entre la longueur d'onde incidente et celle produite par le cristal. Une étape cruciale de l'installation d'un tel laser implique donc de trouver une répartition d'énergie convenable pour l'application souhaitée. Dans notre cas, l'objectif était d'obtenir une puissance équivalente au moins dans le domaine visible par rapport au CFR, tout en ayant une répartition de puissance permettant d'exploiter les canaux ultraviolet (UV) et infrarouge (IR).

Trouver une répartition de puissance satisfaisante est une étape importante et chronophage. Importante car elle conditionne l'ensemble des futures mesures, chronophage car les essais dépendent de différents facteurs qu'il convient de prendre en compte et qui compliquent les réglages. Les systèmes laser ont parfois un "temps de chauffe", c'est-à-dire que leur répartition de puissance peut varier pendant les premières minutes d'opération. La température du local influe également sur cette répartition, et à son tour le système lidar influe sur la température du local après un long temps de mise sous tension. Il est évident que la question de la température revêt une importance particulière dans le contexte antarctique de DDU. Enfin dans le cas d'un système neuf, plusieurs cycles d'opérations peuvent être nécessaires avant d'obtenir une réponse stable de la part de l'instrument.

Une fois la répartition de puissance établie, la source laser doit être intégrée au système lidar complet. Dans notre cas, nous avons choisi de conserver le CFR en configuration opérationnelle : cela permet de pallier à une potentielle panne du Qsmart. Dans le contexte isolé de l'Antarctique, posséder un laser opérationnel supplémentaire est un atout majeur. Les pannes instrumentales sur les stations isolées peuvent mettre à l'arrêt des programmes de mesures pendant de longues périodes. Par ailleurs, il est scientifiquement intéressant de disposer de deux sources lasers distinctes pour un même système lidar. Cela permet de comparer des mesures acquises en utilisant les deux lasers dans des conditions atmosphériques quasi identiques.

Le choix de conserver les deux lasers opérationnels a des conséquences directes sur la configuration de l'instrument. Un lidar stratosphérique est un système minutieusement synchronisé. Tout d'abord, c'est cette synchronisation qui permet de faire correspondre à un instant de mesure une altitude. Surtout, pour pouvoir acquérir des signaux exploitables aux altitudes stratosphériques, de tels systèmes doivent obturer les signaux correspondant aux altitudes les plus basses de l'atmosphère. En effet, la réponse des premiers kilomètres de l'atmosphère est telle qu'elle risquerait d'endommager les récepteurs optiques. La solution généralement retenue est l'installation d'un "chopper" (ou hachoir en français), une roue actionnée par un moteur qui laisse ou non passer la lumière selon la disposition des parties opaques et traversantes de la roue. Si l'on veut que cette roue ne bloque que la partie de la réponse atmosphérique à chaque impulsion laser correspondant aux basses altitudes, il faut une synchronisation minutieuse entre cette roue et le déclenchement des impulsions laser.

Bien entendu, les constantes temporelles telles que le délai entre le signal de commande électronique du laser

et le déclenchement effectif de l'impulsion dépendent de chaque instrument. Ainsi, les réglages de synchronisation du CFR et du Qsmart diffèrent. Il a donc fallu modifier le chronogramme de synchronisation entre l'émission laser et la fenêtre électronique de la réception. Enfin, au niveau électronique, les systèmes lasers ont des contraintes différentes. Les niveaux des signaux de commande nécessitent d'être adaptés en tension pour commander les lasers. Une fois toutes ces adaptations réalisées, il est désormais possible de passer en quelques minutes de la configure basée sur le CFR à celle adaptée au Qsmart.

La dernière étape cruciale de la campagne a été d'adapter les montages optiques en réception pour pouvoir acquérir simultanément les signaux reçus dans l'UV, l'IR et le visible. Un montage temporaire a été réalisé dans cet objectif puisque l'installation des optiques de réception définitifs n'était pas prévue dans le cadre de cette campagne. Les possibilités d'intervention sur l'instrument n'étant pas fréquentes étant donné le contexte de la station, nous avons fait notre possible pour pouvoir acquérir dès 2022 des mesures multispectrales. Ainsi, une voie de réception UV a été ajoutée, la voie IR étant déjà présente en réception bien qu'inutilisée en configuration CFR.

Pendant et à la suite de la campagne, il a enfin fallu adapter les différentes procédures de traitement des données mesurées à la nouvelle configuration instrumentale. Une étape majeure a été d'adapter les procédures d'inversion lidar aux longueurs d'onde nouvellement exploitées. J'ai donc mis au point les procédures de traitement pour les mesures multispectrales du Qsmart. Les procédures de Klett et de Raman ont toutes deux été codées, bien que seule la méthode de Klett soit pour le moment opérationnelle. Ces mesures permettent donc d'exploiter les premières mesures lidar multispectrales acquises à DDU. À notre connaissance, il s'agit du seul lidar multispectral stratosphérique installé en Antarctique à ce jour. La décision d'installer dès que possible un système permettant l'acquisition de mesures multispectrales a vite été confortée par l'éruption exceptionnelle du volcan Hunga Tonga-Hunga Ha'apai en janvier 2022 et l'injection d'aérosols en stratosphères qu'elle a causée. Cet événement est présenté dans la section suivante.

5.3 Éruption du volcan Hunga Tonga-Hunga Ha'apai

Le volcan Hunga Tonga (20.54°S , 175.38°W) a connu une éruption historique le 15 janvier 2022. Une première éruption a eu lieu le 20 décembre 2021, puis les alertes ont été levées le 11 janvier 2022. Mais le 15 janvier, ce volcan sous-marin a causé l'éruption explosive la plus importante depuis le début des observations modernes. L'activité ondulatoire déclenchée dans l'atmosphère par cette éruption est sans précédent et ne peut être comparée qu'à l'éruption historique du Mont Krakatoa en 1883. Surtout, en raison de la puissance de l'explosion, des particules ont été injectées jusque dans la mésosphère, à des altitudes inédites d'environ 55 km [Carr et al., 2022]. Ce volcan étant sous-marin, une grande quantité d'eau a été vaporisée et projetée à très haute altitude. Cet événement extraordinaire est déjà l'objet de nombreuses études dans des domaines variés. Sergey Khaykin a soumis une de ces études à la revue *Nature Communications Earth Environment* intitulée "Global perturbation of stratospheric

water and aerosol burden by Hunga eruption" à laquelle j'ai contribué. De manière similaire à la publication [Khaykin et al. \[2020\]](#) portant sur le Black Summer australien, j'ai calculé la masse de H₂O injectée dans l'atmosphère par l'éruption. Par ailleurs, cette éruption est intéressante car elle présente des caractéristiques atypiques : l'altitude d'injection est très importante, ce qui laisse penser que les particules et espèces introduites auront un long temps de résidence en stratosphère, et la proportion en vapeur d'eau des espèces injectées est forte puisque le volcan est sous-marin. Par ailleurs, compte tenu de l'ampleur de l'évènement et de la position du volcan, il était attendu que les aérosols injectés soient transportés jusqu'aux hautes latitudes australes. C'est en partie ce facteur qui nous a poussé à installer une voie de réception UV provisoire pour le lidar de DDU. À partir de début février 2022, nous avons en effet pu détecter les panaches d'aérosols introduits en stratosphère par cet épisode volcanique. La première détection de ces aérosols à 532 nm est incluse dans [Khaykin et al. \[2022\]](#). Puis, de février au début de la saison de PSC, nous avons pu mesurer à de nombreuses reprises ces aérosols. Nous présentons dans ce chapitre des quantifications liées à la composition chimique et particulaire en stratosphère. Le cas de l'éruption du Tonga est particulier dans le sens où une importante hydratation de la stratosphère a pu être observée. Cette mesure n'étant pas disponible à Dumont d'Urville, nous utilisons l'observation satellite en complément d'une caractérisation fine de la granulométrie des aérosols volcanique permise par l'évolution de l'instrument suite à la campagne.

5.3.1 Calculs des masses injectées en stratosphère

En appliquant la méthode décrite en section [2.3](#) nous avons estimé la masse de vapeur d'eau en stratosphère injectée par l'éruption du Hunga Tonga. Les masses calculées sont présentées en figure [5.6](#). Cette figure inclut les estimations basées sur les version 4.2 et 5 des mesures de MLS puisqu'elles fournissent des valeurs significativement différentes. La version 5 est récente, et de nombreuses études s'appuient encore sur la version précédente. Les fortes concentrations en vapeur d'eau causées par l'éruption ont dépassé les seuils fixés par les équipes de MLS pour prévenir des mesures aberrantes. Nous avons donc décidé d'ignorer les critères de filtrage habituellement utilisés pour exclure les mesures comportant des erreurs afin d'estimer au mieux les masses de H₂O. Prendre en compte ces critères menait clairement à sous-estimer les masses d'eau réelles dans les premiers jours suivant l'éruption principale.

Les données MLS v5 mènent à estimer une masse de H₂O injectée de 119 ± 6 Tg, soit 7.9% de la masse de H₂O pré-éruption dans le même domaine. Utiliser les données de MLS v4.2 aboutit à une injection de 137 ± 7 Tg (soit 8.1% de la masse totale). Cette valeur est en accord avec les résultats publiés par [Xu et al. \[2022\]](#) qui mentionnent une injection de 139 ± 8 Tg, soit 8.9%, et est inférieure à celle publiée par [Millán et al. \[2022\]](#), de 146 ± 5 Tg, soit 10%, basée sur MLS v4.2 [\[Khaykin et al., 2022\]](#). Il est important de garder à l'esprit que les masses calculées, souvent présentées comme "masses stratosphériques" dans les publications, dépendent fortement des limites verticales considérées qu'il convient de préciser.

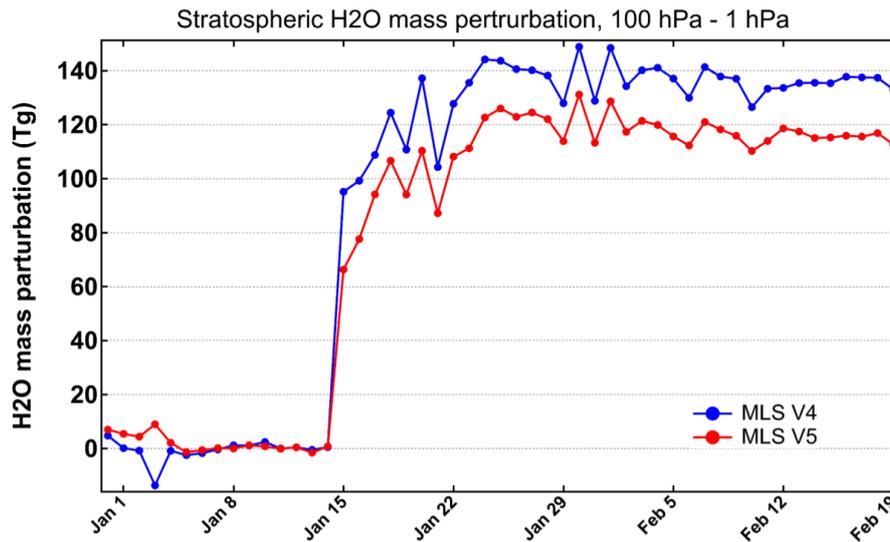


FIGURE 5.6 – Perturbation de la masse de vapeur d'eau entre 100 hPa et 1 hPa entre -90°S et 90°N à la suite de l'éruption du Hunga Tonga, calculée à partir des mesures de MLS v4 et v5, en fonction du temps. Figure issue de [Khaykin et al. \[2022\]](#).

Bien que ces résultats n'aient pas été inclus dans l'étude de [Khaykin et al. \[2022\]](#), nous avons également calculé la masse d'aérosols injectés par l'éruption du 15 janvier à partir des mesures d'extinction de OMPS à 600, 675 et 745 nm. Les effets de saturation des mesures de OMPS ont déjà été mentionnés en section [4.4](#). Ces calculs de masses sont présentés en figure [5.7](#). Le figure [5.7](#) montre l'impact conséquent de l'éruption du Hunga Tonga sur la charge en aérosols stratosphériques. Dès les premiers jours suivant l'injection, la masse d'aérosols entre 380 K et 40.5 km a augmenté de 75 à 100% par rapport à son niveau pré-éruption, selon la longueur d'onde. Les niveaux pré-éruptions ont été estimés en prenant la moyenne de la masse d'aérosols entre le 1er et le 12 janvier 2022. On remarque sur la figure [5.7](#) que la masse d'aérosol ne cesse d'augmenter durant plus de 4 mois après l'injection. Cela s'explique dans un premier temps par la chimie du soufre : le soufre injecté en stratosphère est oxydé en aérosol d'acide sulfurique durant les premiers jours suivant l'évènement, ce qui explique l'augmentation progressive de la masse d'aérosol calculée à partir des mesures de OMPS. Cette augmentation progressive peut aussi être expliquée par des raisons instrumentales. Tout d'abord, comme expliqué en section [4.4](#), les mesures d'extinction de OMPS saturent à partir de $0,01 \text{ km}^{-1}$ et ainsi, à mesure que les panaches d'aérosols se dispersent, les mesures cessent de saturer et les masses estimées augmentent. Dans le cas de l'éruption du Hunga Tonga, l'injection a atteint des altitudes très élevées, au-delà de 50 km. Hors, les mesures de OMPS ne couvrent que le domaine allant de 10.5 à 40.5 km. Ainsi, à mesure que les panaches d'aérosols descendent en altitude, ils entrent dans le champ de vue et sont pris en compte dans les calculs de masse. Pour conclure, ces mesures montrent que l'injection stratosphérique causée par l'éruption du Hunga Tonga a eu un impact majeur sur la charge en aérosols en stratosphère, et que ces effets sont observés sur des échelles de temps dépassant les 5 mois.

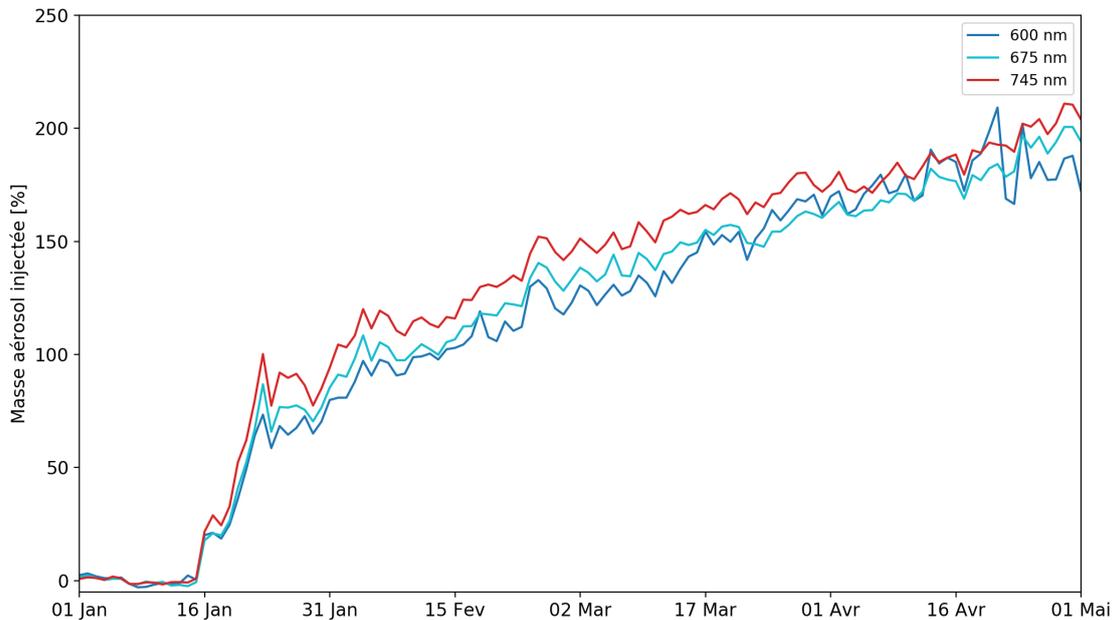


FIGURE 5.7 – Perturbation de la masse d’aérosols entre 380 K et 40.5 km, en pourcentage par rapport au niveau pré-éruption pris entre le 1er et le 12 janvier 2022. Les calculs de masses sont réalisés à partir des mesures d’extinction à 600, 675 et 745 nm de OMPS.

5.3.2 Détections des panaches d’aérosols à DDU

À partir du 11 février 2022, les panaches d’aérosols stratosphériques liés à l’éruption du Hunga Tonga ont été détectés à DDU. Contrairement aux mesures d’aérosols carbonés en 2020 présentés au chapitre 4, cette fois-ci les détections furent irrégulières et entre-coupées de jours de mesures de ciels clairs. Les détections des panaches du Hunga Tonga à DDU ont coïncidé avec la campagne mentionnée en section 5.2 pendant laquelle l’ancienne et la nouvelle source laser ont toutes deux été utilisées, et pendant laquelle de nombreux réglages différents ont été testés autant au niveau de la répartition de puissance du laser que de la configuration du banc optique. Dans ce contexte, il est difficile d’étudier l’évolution sur le long terme des propriétés optiques des aérosols comme cela avait été fait pour les feux australiens au chapitre 4, en figure 4.11 notamment. Toutefois, nous avons assez de profils pour faire une bonne caractérisation de l’événement et de fait marquer la différence entre 2020 et 2022, entre la pyroconvection et le volcanisme.

La figure 5.8 présente les mesures réalisées avec la nouvelle source laser du 12 février au 30 juin 2022. Ces mesures sont très intéressantes car elles montrent un comportement différent des couches d’aérosols par rapport à ce qui a pu être observé au chapitre 4. Ici, il ne semble pas y avoir de cohérence générale de la couche d’aérosols, dans le sens où ils ne forment pas une couche globalement homogène en basse stratosphère comme en figure

4.7, et leurs propriétés optiques varient significativement au cours du temps. On note en particulier deux mesures atypiques les 17 mai et 02 juin 2022. Les couches d'aérosols sondées lors de ces deux sessions de mesures présentent des valeurs de R_{532} très élevées, quand bien même l'injection stratosphérique a eu lieu plus de 4 mois auparavant. Les 17 mai et 02 juin, R_{532} atteint respectivement 1.67 et 1.76, qui sont des valeurs typiques de PSC. Cependant, à ces deux dates, les températures mesurées sont nettement au-dessus des seuils d'existence des PSC, si bien qu'il n'y a pas de doute sur la nature de ces couches d'aérosols. Le 17 mai, la radiosonde lancée à DDU a mesuré des températures entre 202 K et 210 K à l'altitude des deux couches d'aérosols détectées. Le 02 juin, les températures mesurées entre 208 K et 211 K à l'altitude de la couche d'aérosols ne permettent pas non plus la formation de PSC. Ces deux mesures exhibent des propriétés optiques significativement supérieures à ce qui est observé sur le reste de la figure 5.8, à l'exception du 07 mars où R_{532} atteint 1.8. De telles propriétés optiques font écho aux très fortes valeurs de rapport de rétrodiffusion des panaches d'aérosols du Tonga mesurés plus tôt à moyenne latitude [Khaykin et al., 2022].

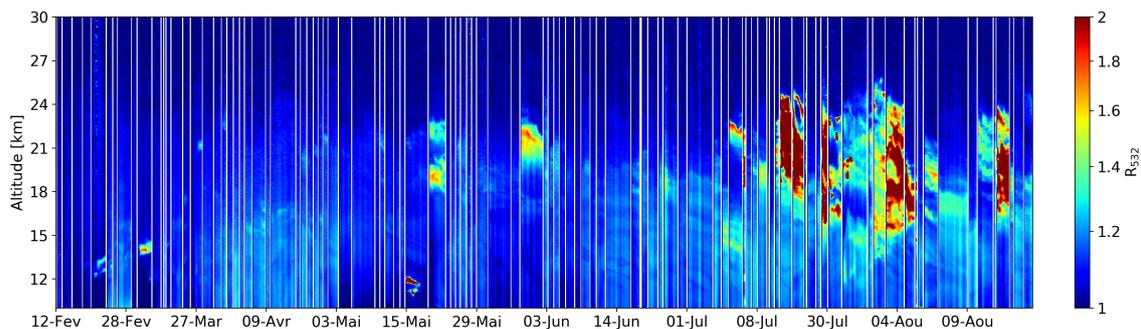


FIGURE 5.8 – Série temporelle de R_{532} du 12 février au 30 juin 2022, comprenant seulement les mesures réalisées avec la nouvelle source laser. Les lignes verticales blanches délimitent les jours de mesures.

Comme cela a déjà été discuté au chapitre 4, la présence d'une forte charge en aérosols jusqu'à la formation du vortex et le début de l'hiver pose la question des potentielles interactions entre couches d'aérosols et PSC. Cette fois-ci, il ne s'agit pas d'aérosols carbonés mais soufrés. Bien sûr, il est trop tôt pour tirer des conclusions sur ces événements très récents car l'hiver est encore en cours ce qui ne nous permet pas de juger complètement la saison 2022 de PSC à DDU tout en prenant suffisamment de paramètres en compte.

De l'installation de la nouvelle source laser en février jusqu'à environ fin avril, nous avons été amené à tester de nombreux réglages différents sur notre configuration instrumentale afin d'en tirer le meilleur parti. Cette importante variabilité rend compliquée l'étude en volume des données acquises sur cette période. Nos mesures nous permettent toutefois de trancher sur la détection de panaches d'aérosols, de connaître leur altitude et dans certains cas, d'accéder avec précision à leurs propriétés optiques. Un aspect remarquable de la figure 5.8 est l'importante variabilité des altitudes de détection des panaches. Si les premiers panaches ont été détectés relativement bas,

entre 12 et 15 km en février, ils sont ensuite mesurés de plus en plus haut avec un nombre important de couches entre 18 et 25 km de avril à juin 2022. Cela s'explique vraisemblablement par la très haute altitude d'injection due à l'ampleur de l'éruption, qui a atteint plus de 50 km, comme reporté par Carr et al. [2022]. Enfin, l'injection massive de vapeur d'eau en stratosphère pourrait laisser penser à une saison particulièrement forte en occurrence de PSC, toutefois il ne faut pas tirer de conclusion hâtive car des paramètres comme des températures plus froides que la moyenne pendant une période plus longue auraient également tendance à favoriser la formation de PSC.

5.4 Restitution de distributions en taille de population d'aérosols à partir de mesures lidar multispectrales

La mesure simultanée à trois longueurs d'onde des propriétés optiques d'aérosols permet d'estimer la distribution en taille de ces populations de particules, comme cela a été mentionné précédemment. Pour ce faire, j'ai utilisé un modèle développé par Julien Jumelet. La distribution en taille d'une couche d'aérosols est une caractérisation microphysique et plus seulement optique, sa restitution peut permettre de différencier des mesures d'aérosols et peut également être très intéressante pour la modélisation d'évènements tels que les éruptions volcaniques et les feux de forêts. Une distribution en taille est précieuse à la fois par l'information qu'elle représente, en tant que jeu de variables sur lequel valider des sorties de modèles, puisqu'à partir de la distribution en taille on peut, à l'aide de paramétrisations dédiées, calculer les efficacités chimiques de réaction et les taux de chauffage des espèces, entre autres. La distribution en taille est aussi géométriquement reliée aux densités de surface et de volume et au rayon effectif. Cette section présente la méthode permettant d'aboutir à ces distributions, puis présente les résultats de l'application de cette méthode à nos mesures d'aérosols des panaches du Hunga Tonga.

Il n'existe aujourd'hui que peu d'instruments permettant une restitution de distributions en taille. Tout d'abord, certaines mesures in-situ sont possibles : ce sont les compteurs optiques de particules (OPC, *optical particle counter* en anglais). Cette solution est coûteuse et complexe à mettre en place dans le cadre d'évènements ponctuels comme la mesure d'un panache d'aérosols volcaniques, c'est pourquoi elle reste relativement marginale : les OPC ont été utilisés pour les mesures pionnières des aérosols stratosphériques à Laramie, Wyoming aux États-Unis, entre autres par Terry Deshler. D'autres types de compteurs ont été mis au point, comme les POPS (*Portable Optical Particle Counter*), les STAC (*Stratospheric Tropospheric Aerosol Counter*) ou encore les LOAC (*Light Optical Aerosol Counter*). Au-delà des OPC, les instruments réalisant des mesures multispectrales d'extinction ou de rétro-diffusion d'aérosols permettent d'accéder aux distributions en taille. C'est le cas notamment de l'instrument spatial SAGE III, qui mesure l'extinction aérosol à 9 longueurs d'onde. C'est également le cas du satellite OMPS qui a été présenté au chapitre 2, qui mesure l'extinction à 6 longueurs d'onde. À ma connaissance, ce dernier n'a cependant pas encore été utilisé pour la restitution de distribution en taille. Enfin, les lidars dotés d'au moins 3 longueurs d'onde

en émission permettent de remonter à la distribution en taille des populations de particules sondées. Il existe cependant peu de systèmes équipés d'une telle technologie, et le lidar de DDU est le seul de ce type en Antarctique. Ailleurs, on peut citer le lidar ALOMAR en Norvège, les lidar LILAS et IPRAL, installés en France à Lille et Palaiseau respectivement. Les sites disposant de plusieurs lidar opérant à différentes longueurs d'onde, tel que l'observatoire du Maito à la Réunion, peuvent théoriquement mettre en place une telle configuration. Ainsi, la campagne décrite en section précédente permettant d'ajouter des longueurs d'onde au lidar de DDU est particulièrement intéressante puisqu'elle permet d'étendre les capacités spectrales de détection dans une région non couverte par ce type de dispositif.

5.4.1 Méthode

Les liens entre la description microphysique d'une population de particules et ses propriétés optiques sont complexes. Il est possible de calculer directement les propriétés optiques d'un ensemble de particules à partir de sa distribution en taille, mais l'inverse n'est pas direct. À un même jeu de propriétés optiques (tels que trois rapports de rétrodiffusion à trois longueurs d'onde distinctes) peuvent correspondre plusieurs distributions en taille. Ainsi, pour estimer la taille des aérosols mesurés par notre lidar à DDU, un calcul direct n'est pas possible. La méthode implémentée par Julien Jumelet et utilisée ici est décrite en détail dans [Jumelet et al. \[2008\]](#). Elle consiste à calculer les propriétés optiques d'aérosols d'un grand nombre de distributions en taille pour des conditions atmosphériques connues, sous l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique, puis à trouver la distribution dont les propriétés optiques simulées correspondent au mieux aux mesures lidar. C'est pour cela qu'il s'agit d'une estimation et non d'un calcul de la distribution en taille.

Les paramètres connus sont la température, la pression, l'altitude, et les concentrations en vapeur d'eau et en acide nitrique au moment des mesures lidar. L'acide nitrique n'intervient que lorsque les températures sont suffisamment froides ($T < 200$ K) pour permettre sa condensation. Les paramètres variables sont la concentration en acide sulfurique, le rayon moyen des particules et l'écart-type associé. Si la réalité physique des panaches est souvent bimodale (voire plus), chaque mode implique 3 nouvelles variables et donc multiplie d'autant le nombre d'observables nécessaires. Enfin, dans le cas des mesures au-dessus de Dumont d'Urville, le transport longue distance permet le plus souvent de considérer les populations d'aérosols comme unimodales (à l'exception bien sûr des PSC), les modes les plus "grossiers" ayant souvent sédimenté bien avant et les modes fins ayant évolué pour être inclus dans le mode dominant. Nous nous contenterons donc d'une distribution à un mode unique. La première étape de la méthode est donc de générer, à partir des paramètres énumérés ici, un ensemble de distributions en taille de particules et les propriétés optiques qui leur correspondent.

Les particules sont ici considérées parfaitement sphériques et liquides. Nous supposons que les distributions en taille des aérosols stratosphériques peuvent être représentées par une loi lognormale [\[Pinnick et al., 1976\]](#), qui

donne la densité de particules de rayon r par la formule suivante, où N_0 [cm^{-3}] est la densité totale de particules, r_m [μm] le rayon médian, et σ l'écart-type de la distribution :

$$n_r = \frac{N_0}{\sqrt{2\pi r} \log(\sigma)} \exp\left(-\frac{\log^2(r/r_m)}{2 \log^2(\sigma)}\right) \quad (5.1)$$

La première étape consiste à calculer les compositions chimiques découlant des conditions atmosphériques données et des distributions en taille considérées. Pour ce faire, le modèle considère la solution binaire H_2SO_4/H_2O formant les aérosols de fond et la solution ternaire $H_2SO_4/HNO_3/H_2O$ (STS) [Larsen et al., 2000, Krieger et al., 2000]. On considère également que la composition de la phase condensée est à l'équilibre thermodynamique avec la phase gazeuse. Le modèle est initialisé avec une concentration en aérosols soufrés (H_2SO_4/H_2O) et les abondances totales de H_2O et HNO_3 , à une température qui assure que la totalité de HNO_3 est en phase gazeuse ($\sim 220K$). Puis on refroidit peu à peu en faisant condenser H_2O et HNO_3 au sein des aérosols. À chaque étape, le modèle s'assure les quantités de H_2O et HNO_3 en phases condensée et gazeuse correspondent aux quantités totales fournies en entrées. Les compositions des différents constituants sont calculées en imposant l'égalité des pressions partielles de HNO_3 et H_2O à la surface des phases condensées et en phase gazeuse. Une fois la température de consigne atteinte, le modèle ajuste la concentration de H_2SO_4 et les compositions qui en découlent de manière à correspondre à la distribution en taille fournie. À l'issue de cette étape, on dispose des concentrations et compositions des phases condensées pour chaque distribution en taille, aux conditions atmosphériques imposées. Enfin, le modèle calcule l'indice de réfraction complexe correspondant aux compositions et concentrations établies précédemment selon la méthode de Luo et al. [1996].

L'étape suivante consiste à simuler les propriétés optiques des distributions en taille considérées selon la théorie de Mie, valable pour les particules sphériques. Le coefficient de rétrodiffusion de chaque distribution, noté $\beta_{Mie,\lambda}$, dépend de la distribution en taille $n(r)$, de l'indice de réfraction a et de la section efficace différentielle de rétrodiffusion de Mie $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ (*Mie particle backscattering differential cross section* en anglais) :

$$\beta_{Mie,\lambda} = \int_0^\infty n(r) \frac{d\sigma}{d\Omega}(r, \lambda, a) dr \quad (5.2)$$

Le modèle prend en entrée les coefficients de rétrodiffusion calculés à 355, 532 et 1064 nm et les incertitudes associées, puis identifie un nuage de point dont les propriétés optiques sont dans l'intervalle des erreurs estimées. Ensuite une fonction de coût permet de trouver la solution la plus probable, sachant que des minima locaux sont présents. Un filtrage est donc appliqué autour de la médiane du nuage avant de recalculer la fonction de coût afin d'obtenir la solution finale. Dans notre cas, cette fonction de coût s'exprime comme suit [Jumelet et al., 2008] :

$$J_{N_0,r,\sigma} = \sum_{i=1}^3 \frac{(\beta_{i,model} - \beta_{i,lidar})^2}{\Delta\beta_{i,lidar}^2} + \sum_{j=1}^2 \frac{(CR_{j,model} - CR_{j,lidar})^2}{\Delta CR_{j,lidar}^2} \quad (5.3)$$

Dans notre cas, le modèle liant les propriétés optiques aux distributions en taille est fortement non linéaire, ce qui implique que la solution minimisant la fonction J n'est pas nécessairement la plus probable [Jumelet et al., 2008, figure 3]. Ce serait le cas si le modèle était quasi linéaire et que les erreurs associées aux mesures lidar étaient gaussiennes. Afin de ne pas sélectionner une solution potentiellement isolée et non satisfaisante, notre méthode se base sur l'identification d'un groupe de solutions probables, ou cluster. Le centre du groupe de solutions est défini comme la médiane de N_0 , r_m et σ de l'ensemble des solutions possibles. Son étendue est prise égale à l'écart-type de ces trois variables (σ_{N_0} , σ_{r_m} et σ_σ). Une fois le cluster identifié, la solution est cherchée en minimisant la fonction de coût J au sein de ce groupe de solutions. Cette méthode est préférée à la moyenne ou la médiane car elle ne dépend pas de la taille du cluster. Le triplet (N_0, r_m, σ) ainsi sélectionné est la distribution en taille correspondant au mieux aux mesures lidar fournies en entrée. Dans la pratique, les erreurs associées aux rapports de rétrodiffusion fournis en entrée sont donc importantes car elles impactent directement la quantité de solutions possibles : des erreurs trop restreintes pourraient aboutir à n'identifier aucune solution. La section suivante présente les résultats de l'application de cette méthode aux mesures d'aérosols réalisées en 2022 à DDU.

Une fois les paramètres (N_0, r_m, σ) d'une distribution calculés, plusieurs quantités sont généralement calculées pour caractériser une population de particules. Dans la partie suivante seront exprimées les densités de surface et de volume des distributions en taille, A et V . Ces quantités sont définies comme suit, et peuvent être exprimées en fonction des moments d'ordre 2 et 3, notés m_2 et m_3 respectivement :

$$A = \int_0^\infty 4\pi r^2 n(r) dr = 4\pi m_2 = 4\pi N_0 r_m^2 \exp(2 \ln^2(\sigma)) \quad (5.4)$$

$$V = \int_0^\infty \frac{4\pi}{3} r^3 n(r) dr = 4\pi m_3 = \frac{4\pi}{3} N_0 r_m^3 \exp\left(\frac{9}{2} \ln^2(\sigma)\right) \quad (5.5)$$

Enfin, un paramètre fréquemment utilisé est le rayon effectif r_{eff} . Il s'agit d'une quantité introduite par [Hansen and Travis 1974] qui est un rayon moyen d'une distribution en taille pondéré par la surface transversale (*cross-section* en anglais). Le rayon effectif est couramment utilisé en modélisation ainsi que dans l'étude des phases condensées de la vapeur d'eau et dans la caractérisation de l'aspect de forme des cristaux. [Lacis et al. 1992] ont mis en évidence que le forçage climatique causé par les aérosols stratosphériques pouvait être adéquatement décrit par le seul rayon effectif d'une distribution en taille. Son expression est la suivante :

$$r_{eff} = \frac{m_3}{m_2} = r_m * \exp\left(\frac{5}{2} \ln^2(\sigma)\right) \quad (5.6)$$

5.4.2 Résultats

Dans cette section, la méthode détaillée précédemment est appliquée à différentes mesures d'aérosols acquises en 2022 afin d'en restituer les distributions en taille. Les mesures sélectionnées sont celles conduites les 7 mars, 17 mai, 2 juin, 16 juin et 11 juillet. La figure 5.9 fournit les profils de rapports de rétrodiffusion à 355, 532 et 1064 nm pour ces dates. Sur cette figure, les profils sont moyennés par intervalles d'environ 1h30. Comme cela peut être observé sur la figure 5.9, les dates choisies correspondent à des mesures d'aérosols présentant des rapports de rétrodiffusion et des altitudes variés. Comme les dates le laissent penser, les conditions de températures de ces 5 mesures sont très variables, cela peut être confirmé en consultant le tableau 5.1. La figure 5.10 présente les distributions en taille restituées pour ces dates, dont les paramètres sont détaillés dans le tableau 5.1. Les distributions en taille calculées à partir de chaque tranche de 1h30 de mesures sont incluses en figure 5.10, alors que le tableau 5.1 s'appuie sur les paramètres optiques moyennés sur l'intégralité des sessions de mesures.

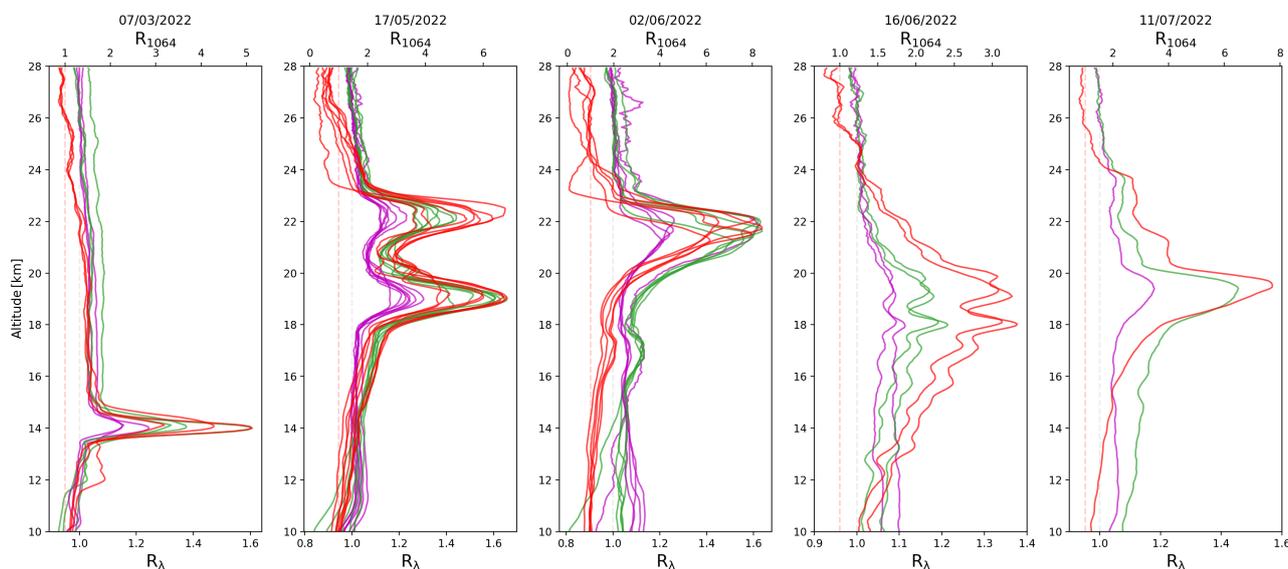


FIGURE 5.9 – Profils de R_{355} (en violet), R_{532} (en vert) et R_{1064} (en rouge) pour les 7 mars, 17 mai, 2 juin, 16 juin et 11 juillet 2022. Ces mesures sont toutes des détections de panaches d'aérosols injectés en stratosphère par l'éruption au Tonga en janvier 2022.

Les distributions en taille calculées montrent tout d'abord une remarquable stabilité. Cette stabilité se constate pour un même jour entre les différents intervalles de 1h30 de mesures. Si les mesures des 17 mai et 2 juin semblent montrer une plus forte variabilité, celle-ci reflète en réalité la variabilité des propriétés optiques mesurées. Ces deux sessions de mesures ont en effet duré respectivement 6 et 8h et les propriétés optiques des aérosols sondés ont évolué durant cet important laps de temps. La stabilité des paramètres restitués se vérifie également entre les différentes mesures : comme le montre le tableau 5.1, les paramètres (N_0 , r_m , σ) sont stables et suivent une évolution temporelle cohérente.

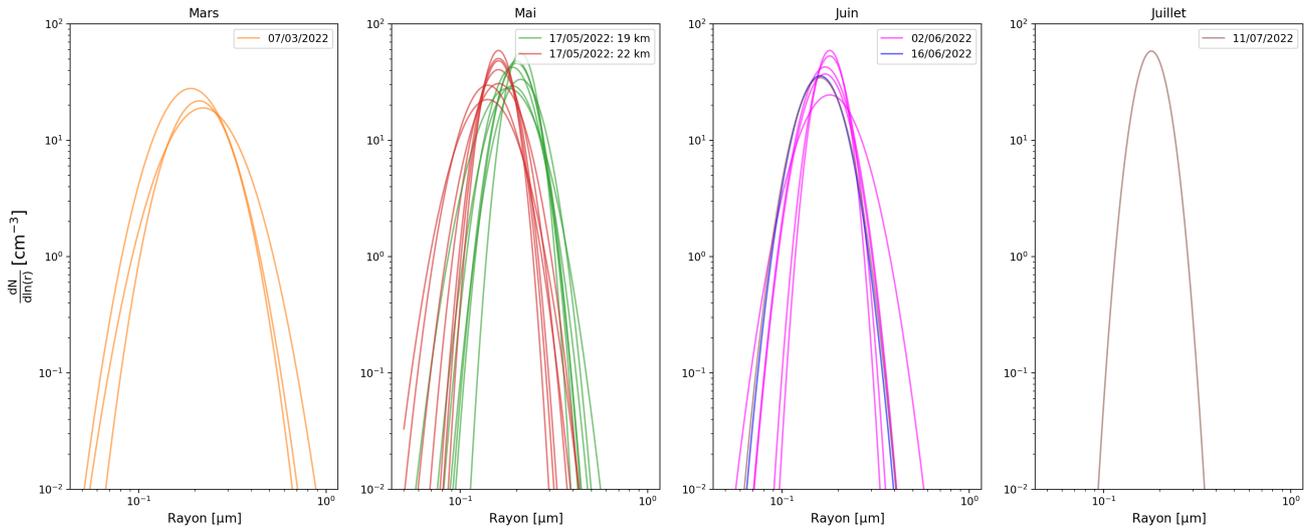


FIGURE 5.10 – Densités de particules en fonction du logarithme du rayon, en μm , issues des estimations de distributions en taille basées sur les mesures lidar des panaches d'aérosols du Hunga Tonga acquises à DDU en 2022. Pour chacune des 6 dates présentées, une distribution en taille est calculée à partir de chaque tranche de 1h30 de mesures. Les paramètres associés, moyennés par jour, sont présentés dans le tableau 5.1.

	07/03/2022	17/05/2022	17/05/2022	02/06/2022	16/06/2022	11/07/2022
N_0	22	20	17	19	18	23
r_m [μm]	0.22	0.21	0.16	0.18	0.16	0.18
σ	1.3	1.17	1.28	1.26	1.28	1.17
z [m]	13,960	18,992	22,100	21,720	18,100	19,500
T [K]	219	208.25	203.25	208.75	201.35	201.25
H_2O [ppm]	4.15	4.12	4.88	4.80	4.24	4.96
HNO_3 [ppb]	2.04	6.17	10.15	8.68	6.71	8.51
A [$\mu\text{m}^2 \cdot \text{cm}^{-3}$]	15.36	11.64	6.18	8.61	6.54	9.84
V [$\mu\text{m}^3 \cdot \text{cm}^{-3}$]	1.34	0.87	0.38	0.59	0.41	0.63
S_{532} [sr]	73	81	80	80	80	77
r_{eff} [μm]	0.261	0.223	0.186	0.206	0.186	0.19

TABLE 5.1 – Caractéristiques des distributions en tailles estimées à partir des mesures lidar des panaches d'aérosols de l'éruption du Hunga Tonga. S_{532} est le rapport lidar à 532 nm, tous les autres paramètres ont précédemment été définis.

Les rayons modaux associés aux distributions en taille calculées sont détaillés dans le tableau 5.1. Les valeurs, entre 0.22 et 0.16 μm , sont en accord avec ce qui est attendu pour des aérosols d'origine volcanique ayant expérimentés plusieurs mois de transport (Deshler et al., 2003). La figure 5.11 rappelle les valeurs de rayons attendues pour les principales particules stratosphériques. La première mesure présentée ici, le 07 mars, est réalisée 51 jours après l'injection stratosphérique du 15 janvier 2022, et la dernière, le 11 juillet, 177 jours après. Il est également constaté que les rayons modaux calculés décroissent avec le temps comme cela est attendu. L'évènement étudié ici

étant particulièrement récent et les instruments permettant de restituer les propriétés microphysiques de panaches d'aérosols stratosphériques étant rares, il n'est pas aisé de trouver un point de comparaison à nos estimations. Toutefois, l'étude de [Khaykin et al. \[2022\]](#) inclut une estimation du rayon effectif des aérosols injectés par l'éruption du Tonga en stratosphère à partir des mesures d'extinction de l'instrument SAGE III/ISS. La figure correspondante est reproduite ici, en figure [5.12](#). Pour leurs estimations, les auteurs ont supposé que les aérosols étaient des gouttelettes de H_2SO_4/H_2O dans un rapport de 75/25. Afin d'estimer l'erreur causée par cette hypothèse en cas de plus forte abondance d'eau, les auteurs ont également réalisé les calculs pour des gouttelettes purement composées d'eau. La figure [5.12](#) montre ainsi les rayons effectifs estimés dans ces deux cas à partir de moyennes mensuelles des mesures de SAGEIII/ISS, de janvier à mai, entre $30^\circ S$ et $10^\circ N$. Les courbes en pointillés représentent le niveau pré-éruption, pris entre octobre et novembre 2021.

Afin de comparer nos mesures à la figure [5.12](#), nous avons calculé les rayons effectifs associés aux distributions en taille estimées pour chaque intervalle de 1h30 de mesures. Les résultats sont présentés en figure [5.13](#), en fonction du jour de l'année 2022. Les incertitudes spécifiées en figure [5.13](#) sont calculées en propageant les erreurs Δr_m et $\Delta \sigma_m$ dans l'équation [5.7](#). Les erreurs ΔN_0 , Δr_m et $\Delta \sigma$ sont calculées statistiquement par le modèle à partir des erreurs sur R_{355} , R_{532} et R_{1064} fournies en entrée. L'expression de Δr_{eff} est la suivante :

$$\Delta r_{eff} = \exp\left(\frac{5}{2} \ln^2(\sigma)\right) \Delta r_m + 5r_m \ln(\sigma) \exp\left(\frac{5}{2} \ln^2(\sigma)\right) \Delta \sigma \quad (5.7)$$

D'après les figures [5.12](#) et [5.13](#), il apparaît que nos estimations sont inférieures à celles proposées par [Khaykin et al. \[2022\]](#). En effet, ces dernières atteignent des valeurs autour de $0.4 \mu m$ de mars à mai, tandis que nos valeurs varient entre $0.16 \mu m$ et $0.30 \mu m$. Le fait que les mesures de SAGE III/ISS soient réalisées entre $30^\circ S$ et $10^\circ N$, zone où les injections dues à l'éruption du Tonga ont eu un impact plus significatif qu'à hautes latitudes, explique en partie ces écarts. Toutefois, l'ordre de grandeur de nos estimations est cohérent, tout comme leur évolution temporelle.

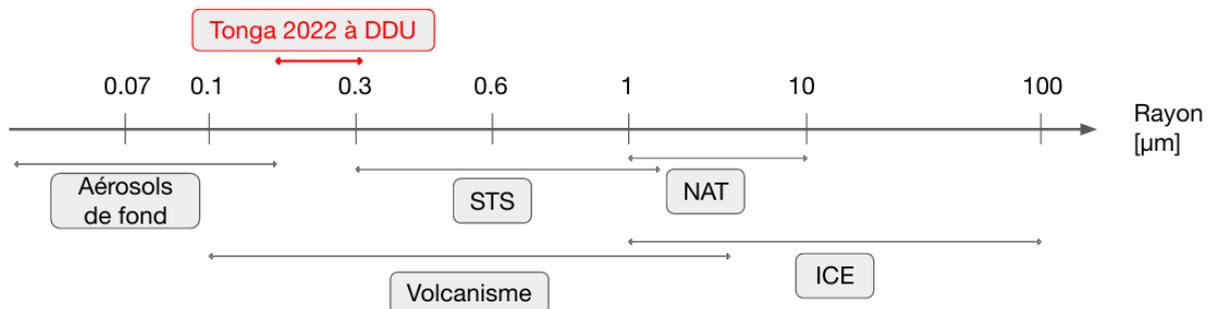


FIGURE 5.11 – Valeurs typiques du rayon moyen des principales particules stratosphériques, avec en rouge les rayons estimés pour les aérosols liés à l'éruption du Hunga Tonga en 2022 à partir des mesures lidar de DDU. Les données sont issues de [Iwasaka et al. \[1986\]](#), [Poole and McCormick \[1988\]](#), [Toon et al. \[1989\]](#), [Tritscher et al. \[2021\]](#).

À partir des simulations permettant d'identifier la distribution en taille correspondant au mieux aux mesures

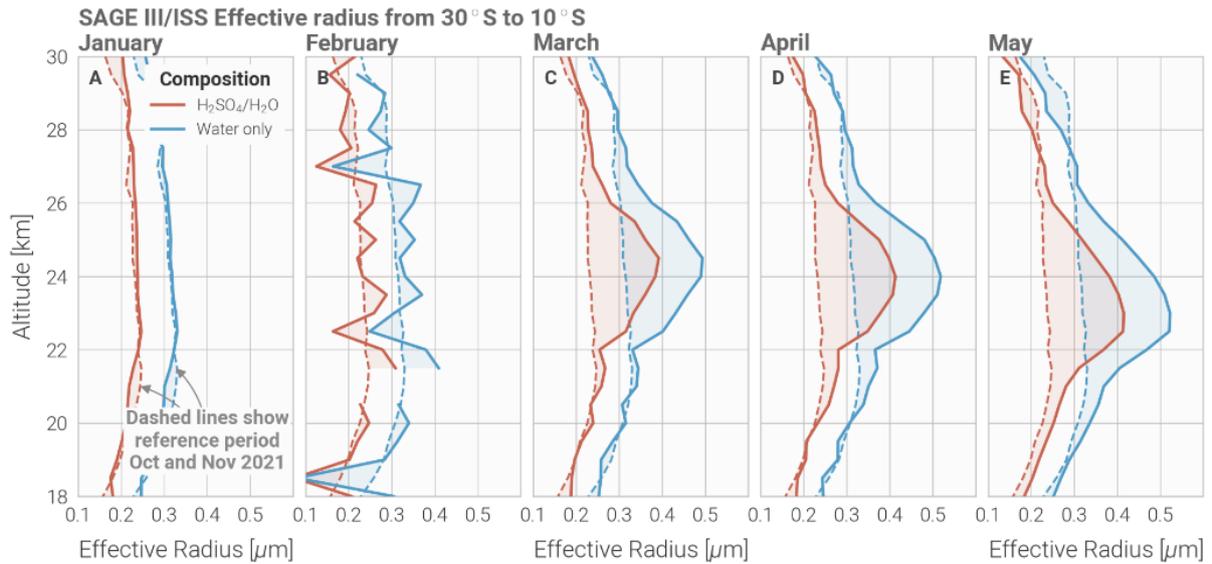


FIGURE 5.12 – Rayons effectifs estimés à partir des moyennes mensuelles des mesures d’extinction de SAGE III/ISS, de janvier à mai 2022, entre 30°S et 10°N. Les courbes en pointillés représentent la situation pré-éruption, prise à partir des mesures de octobre et novembre 2021. Les courbes rouges représentent les estimations faites à partir de gouttelettes de H₂SO₄/H₂O dans un rapport 75/25, les courbes bleues à partir de gouttelettes d’eau seule. Figure reproduite de [Khaykin et al. \[2022\]](#).

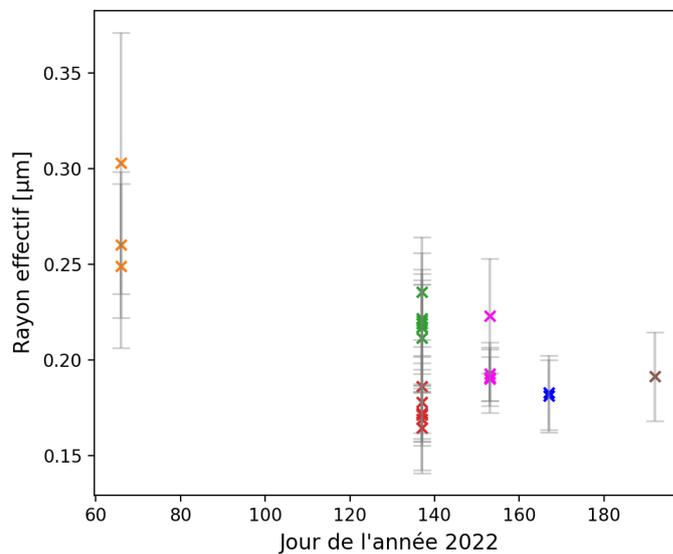


FIGURE 5.13 – Rayons effectifs calculés à partir des mesures lidar conduites à DDU en 2022, en fonction du temps. Pour chaque jour, les calculs sont réalisés sur les tranches de 1h30 de mesures.

lidar, il est possible d’accéder au rapport lidar. Les valeurs, pour les dates considérées, sont consignées dans le tableau [5.1](#). Une fois de plus, ces valeurs montrent une remarquable stabilité, entre 73 et 81 sr. Le rapport lidar est couramment utilisé pour caractériser les particules mesurées au lidar. [Prata et al. \[2017\]](#) ont rassemblé des mesures

de lidar ratio pour différentes éruptions volcaniques afin de caractériser le rapport lidar de ce type de panaches. Ils trouvent que dans le cas de panaches fins d'aérosols âgés, le rapport lidar est en moyenne est de $69 \pm 13 sr$. Cela signifie que nos valeurs sont élevées mais dans la gamme des valeurs attendues pour de telles couches d'aérosols.

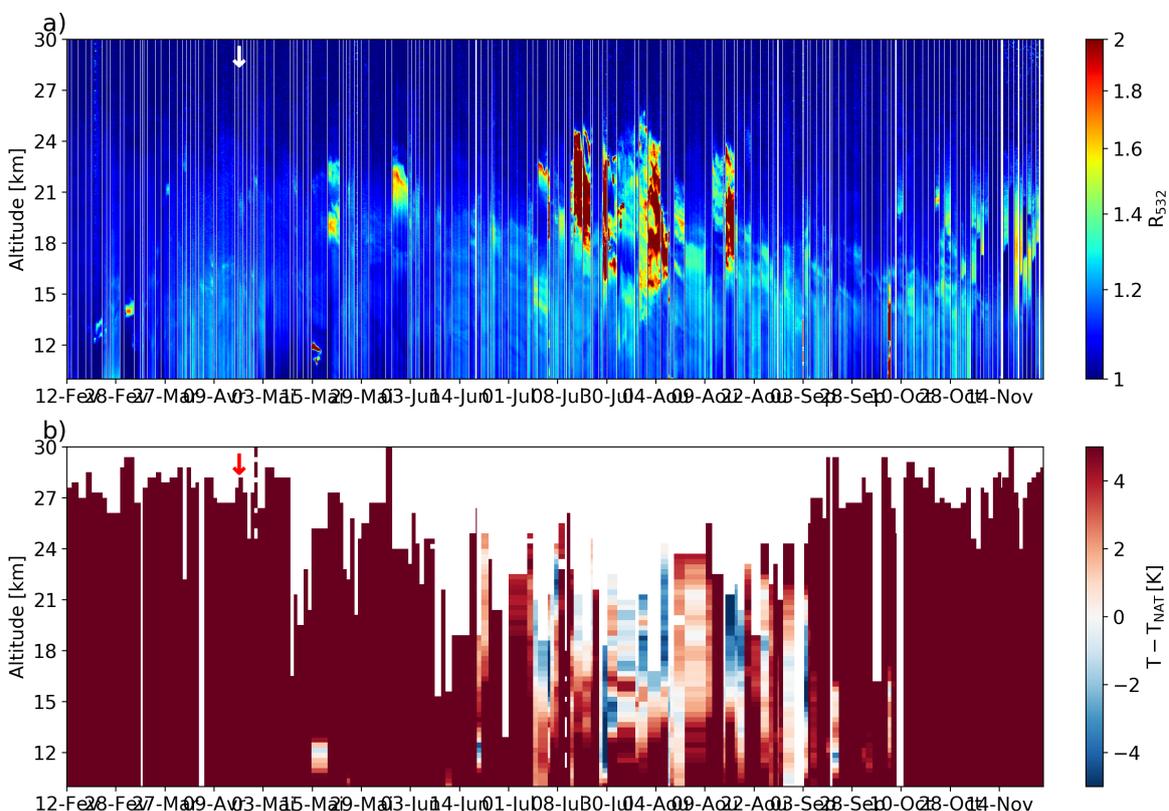


FIGURE 5.14 – (a) Série temporelle du R_{532} calculé à partir des mesures lidar conduites à DDU du 02 juin au 16 août 2022. (b) Série temporelle des températures mesurées par les radiosondes lancées à DDU sur la même période. Les flèches blanche et rouge indiquent la position du 11 juillet 2022. Pour une meilleure visualisation, seuls les jours pour lesquels des mesures ont été réalisées sont représentés.

La mesure réalisée à DDU le 11 juillet 2022 mérite une attention particulière. À cette saison, la distinction entre couche d'aérosols et PSC peut être délicate comme cela a déjà été souligné dans le chapitre précédent. Quelques jours avant et quelques jours après le 11 juillet, des PSC ont été identifiés à DDU. La figure 5.14 présente les mesures lidar réalisées à DDU entre le 02 juin et le 16 septembre 2022, ainsi que l'écart entre les températures mesurées par radiosondes à DDU et la température seuil T_{NAT} . On y reconnaît clairement la présence de PSC avant et après le 11 juillet, ainsi que des températures stratosphériques qui permettent leur formation. Cependant, le 11 juillet la température à l'altitude de la couche d'aérosols (~ 19.5 km) est mesurée à 201.25 K par la radiosonde lancée à DDU et les mesures de H_2O et HNO_3 réalisées ce jour par MLS aboutissent à une température d'existence

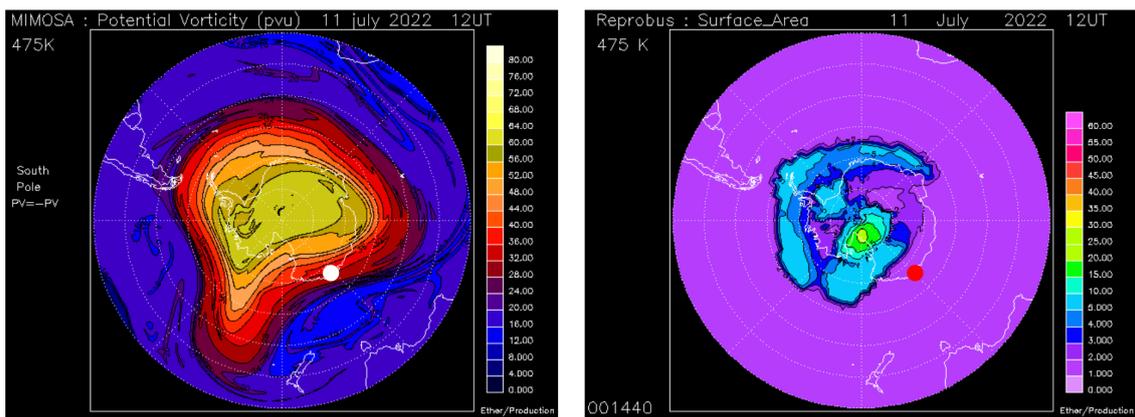


FIGURE 5.15 – Cartes de vorticité potentielle (à gauche) et surface de PSC (à droite) issues des modèles Mimosa et Reprobis pour le 11/07/2022, à 475 K. Les points blanc et rouge indiquent la position de DDU. Les cartes sont accessibles aux adresses suivantes https://cds-espri.ipsl.upmc.fr/espri/pubips1/mimosa_map_uk.jsp et <http://cds-espri.ipsl.fr/etherTypo/index.php?id=1664>.

$T_{STS} = 191.0\text{K}$. Le 11 juillet est indiqué par des flèches rouges sur la figure 5.14. De plus, le modèle Reprobis, même s'il n'est pas forcé par les injections volcaniques ou les mesures en H₂O, ne forme pas de PSC ce jour au-dessus de DDU, et le modèle Mimosa montre que DDU se situe alors en bordure de vortex. Les cartes de vorticité potentielle et de surface de PSC à 475 K le 11 juillet 2022 sont fournies en figure 5.15. La position de DDU y est indiquée par des points rouges.

Cet exemple illustre l'attention qui doit être portée à la distinction entre couches d'aérosols et PSC. Les classifications de PSC ne prennent pas toujours explicitement en compte la température pour distinguer les différents types, et ce à juste titre puisqu'elle pourrait être la source d'erreurs importantes. Dans ce cas, seule la température permet de classer la couche observée en aérosols puisque les propriétés optiques qui lui sont associées auraient poussé à la catégoriser comme un PSC de type STS. La distribution en taille permet également de faire la distinction entre couche d'aérosols et STS puisque comme la figure 5.11 le rappelle, les gouttelettes de STS présentent généralement un rayon plus important que $0.18\ \mu\text{m}$.

Dans cette section, tous les calculs de distribution en taille ont été réalisés en considérant que ces distributions étaient de type lognormales et ne comportaient qu'un seul mode. Dans le cas d'une forte charge en aérosols stratosphériques causée par une récente activité volcanique, la réalité est plus proche d'une distribution bimodale, au moins dans les deux premiers mois. Ce point est à nuancer puisque nos mesures sont réalisées longtemps après l'injection en stratosphère et qu'au fil du temps le mode "grossier" ainsi que les cendres aux rayons modaux supérieurs à $1\ \mu\text{m}$ sédimentent et la population d'aérosol devient plus homogène au sens granulométrique. Toujours est-il que le calcul d'une distribution bimodale aurait exigé davantage de longueurs d'onde pour résoudre le plus grand nombre d'inconnues. Le fait que les distributions calculées présentent des caractéristiques cohérentes valide ce choix de distributions à un unique mode.

Résumé du chapitre 5

- Des mesures d'aérosols acquises en novembre 2019 à DDU ont illustré la difficile identification de la nature de certains panaches, et ce malgré l'utilisation de nombreuses sources de données : des mesures spatiales d'indice aérosol et de concentrations de phases gazeuses, des mesures locales de température à la simulation de trajectoires.
- La campagne de jouvence réalisée à DDU début 2022 a permis d'installer une nouvelle source laser sur la station et d'améliorer la configuration instrumentale. La nouvelle source laser est dotée de 3 longueurs d'onde (355, 532 et 1064 nm) offrant de nouvelles possibilités de caractérisation ainsi que de validation sur la future mission spatiale EARTHCARE.
- Les masses de H₂O et d'aérosols injectées en stratosphère par l'éruption historique du volcan Hunga Tonga Hunga Ha'apai survenue en janvier 2022 ont été exposées, confirmant ainsi la très forte hydratation de la stratosphère à l'échelle globale sur un temps significatif, posant de nouvelles questions autour de la chimie de l'ozone stratosphérique dans ce contexte.
- Une partie des panaches d'aérosols injectés par cette éruption a été transportée jusqu'aux hautes latitudes australes, et a été détectée par les mesures du lidar de DDU. Ces nombreuses mesures d'aérosols d'origine volcanique ont été présentées dans ce chapitre.
- Les performances de la nouvelle configuration multispectrale du lidar de DDU ont été testées pour l'estimation de la distribution en taille des populations d'aérosols injectées par l'éruption du Hunga Tonga et mesurés à DDU. La méthode permettant la restitution de distributions en taille a été détaillée et les résultats ont été discutés.

Conclusions et perspectives

Cette thèse a mis en évidence le potentiel et la richesse de la mesure lidar dans l'étude des aérosols et nuages stratosphériques polaires à hautes latitudes. L'étude des aérosols et nuages en stratosphère connaît un nouvel essor ces dernières années. Les perturbations combinées que sont le changement climatique, le volcanisme et les feux de biomasse d'ampleur font planer de fortes incertitudes sur le devenir à moyen terme de la couche d'ozone. La capacité des feux de biomasse à injecter des aérosols en stratosphère n'est connue que depuis le début des années 2000, et le fait que ces injections puissent avoir une ampleur comparable à des épisodes volcaniques seulement depuis les feux canadiens de 2017, stimulant un effort de recherche dans ce domaine.

Après avoir fourni les éléments de contexte nécessaires à la compréhension de ce manuscrit et exposé les enjeux globaux de la thèse dans le chapitre 1, le chapitre 2 a présenté les instruments, sources de données et méthodes utilisés dans les études présentées par la suite. Le lidar de DDU et les méthodes de traitement appliquées à ses mesures y ont notamment été décrits. Des méthodes importantes pour l'étude des injections stratosphériques, comme le calcul de masse de phase gazeuse ou d'aérosols à partir de mesures de concentrations ou d'extinction particulaire ont également été exposées.

Le chapitre 3 consiste en une étude des mesures de PSC réalisées à DDU de 2007 à 2020. Un des principaux résultats est la mise au point d'une tendance du nombre de jours de PSC par an à DDU, de 2007 à 2020 et de juin à septembre. Cette tendance, de -4.6 jours de PSC par an par décennie, est construite à partir des mesures lidar et des températures de réanalyse de ERA5. Elle est le reflet d'une tendance inverse de température sur la période, également reportée par [Bouillon et al. \[2022\]](#) et [Tritscher et al. \[2021\]](#), qui questionne l'évolution attendue des températures stratosphériques dans le contexte du changement climatique. L'évolution de ces températures est à suivre avec attention puisque celles-ci conditionnent directement la formation des PSC et ainsi la destruction saisonnière d'ozone. Ce chapitre a également permis d'illustrer des propriétés intéressantes des PSC grâce à la finesse des mesures lidar et au volume de données acquis à DDU. Enfin, les mesures de PSC de DDU ont été projetées sur différentes classifications ainsi que comparées à des mesures spatiales, montrant globalement un bon accord dans les distributions de types observés à DDU. Les données de DDU sont précieuses puisqu'il n'existe que très peu de lidar conduisant des mesures de PSC sur le long terme, et d'autant plus en Antarctique.

Dans le chapitre 4, l'épisode exceptionnel de feux de forêt survenu en Australie en 2020 a été décrit. La quantité

inédite d'aérosols injectée en stratosphère par cet évènement a été quantifiée et la partie des panaches ayant été transportée à hautes latitudes et mesurée à DDU a été caractérisée. De janvier à octobre 2020, le lidar de DDU a mesuré ces panaches, permettant ainsi leur caractérisation sur le long terme ainsi que l'observation de l'évolution de leurs propriétés optiques. Notre étude souligne en particulier la difficulté à distinguer les couches d'aérosols des PSC durant l'hiver, puisque leurs propriétés optiques se chevauchent. La présence des aérosols pendant l'hiver pose également la question des potentielles interactions entre les aérosols et les PSC. Les aérosols pourraient favoriser la formation des PSC en servant de noyaux de nucléation, ou bien directement permettre des réactions hétérogènes à leur surface activant les réservoirs chlorés de la stratosphère et ainsi augmenter la destruction saisonnière d'ozone. Une destruction spectaculaire d'ozone a justement été reportée en octobre 2020 à DDU, seulement comparable à l'année 2015, qui avait été marquée par une charge très élevée en aérosols d'origine volcanique liée à l'éruption du Calbuco. Une récente étude de [Rieger et al. \(2021\)](#) fait aussi la comparaison entre ces deux évènements et leurs impacts stratosphériques sur l'ozone et les températures.

L'étude du chapitre 4 a aussi souligné qu'il est parfois difficile voire impossible de déterminer la nature d'une couche d'aérosols à l'aide des capacités instrumentales existantes, et cela a été développé plus largement au début du chapitre 5. Les mesures lidar et de température réalisées à DDU, les mesures spatiales de concentration en CO et H₂O de MLS, d'extinction de OMPS et d'indice aérosol UV de OMI, les simulations de trajectoires de Hysplit et les modélisations de transport de panaches d'aérosols avec le modèle WACCM n'ont pas permis de statuer avec certitude sur la nature des couches d'aérosols mesurées à DDU début novembre 2019 pendant 5 jours consécutifs. Cela, entre autres, a motivé la jouvence du lidar de DDU, qui a consisté dans un premier temps à changer la source laser qui est désormais dotée de 3 longueurs d'onde en émission : à 355, 532 et 1064 nm. Cette nouvelle configuration permet de restituer la distribution en taille des populations de particules mesurées par lidar. Une éruption exceptionnelle s'est produite en janvier 2022 au Tonga et a injecté une quantité considérable d'aérosols à une altitude inédite, il a donc été possible de sonder ces aérosols à DDU et ainsi de mettre en application la méthode de restitution des distributions en taille. Nous avons ainsi pu valider la faisabilité et la cohérence de cette méthode appliquée à la nouvelle configuration du lidar. Cela ouvre de nouvelles perspectives pour la caractérisation des aérosols et des PSC à DDU.

Si des études récentes semblent faire le lien entre charge en aérosols carbonés et occurrences de PSC, ce lien pourrait également exister pour les aérosols sulfatés en cas d'activité volcanique récente. C'est déjà ce que laissent penser les mesures de DDU en 2015 suite à l'éruption du Calbuco, mais l'hiver ayant été particulièrement froid, il était difficile de conclure à un lien de causalité avec une unique année de mesures. Désormais, les mesures de 2022 suite à l'éruption du Hunga Tonga appuient cette hypothèse et soulignent l'importance de la surveillance stratosphérique menée à DDU. La figure [5.14](#) présentée au chapitre 5 montre une saison particulièrement riche en PSC. Les quantités considérables de vapeur d'eau injectée en stratosphère par l'éruption pourraient expliquer cette année exceptionnelle. Nos résultats montrent clairement la présence d'aérosols tout au long de l'hiver, avec

des valeurs de rapport de rétrodiffusion élevées pour des panaches d'aérosols ayant expérimenté plus de 8 mois de transport. S'il est trop tôt pour conclure sur l'année 2022 et si nous ne connaissons pas encore le niveau de destruction de l'ozone stratosphérique en fin d'hiver, cette éruption vient enrichir les études sur l'impact des aérosols volcaniques sur les processus stratosphériques et devrait permettre de futures études intéressantes.

Les études présentées dans cette thèse se situent dans un domaine de recherche actif qui offre de riches perspectives à court terme. La récente éruption au Tonga en 2022 ou encore les feux de forêt australiens de 2020 sont le sujet de très nombreuses publications. Au delà des injections stratosphériques exceptionnelles, ces feux ont permis l'observation d'un processus stratosphérique inédit, à savoir la formation d'un vortex chargé de fumée et d'aérosols s'élevant dans la stratosphère jusqu'à plus de 35 km [Khaykin et al., 2020]. L'éruption au Tonga a quant à elle injecté des aérosols à plus de 50 km, la plus haute altitude mesurée pour un tel phénomène [Carr et al., 2022], et injecté une quantité de vapeur d'eau record [Millán et al., 2022, Xu et al., 2022, Khaykin et al., 2022]. La charge en aérosol de la stratosphère, dont aucune tendance à long terme n'est connue à ce jour, est au centre de nombreux enjeux scientifiques. La capacité récemment découverte des feux de forêt d'impacter significativement cette charge pose question. En effet, dans le cadre du changement climatique, il est attendu que les feux de forêt d'ampleur se multiplient et avec eux les injections stratosphériques d'aérosols carbonés. Cela pourrait tout d'abord augmenter la charge en aérosols de la stratosphère et ainsi avoir un impact radiatif et chimique significatif. L'étude très récente de [Ansmann et al., 2022], basée sur les épisodes de feux sibériens en 2019 et australiens en 2019 - 2020, confirme un lien que notre étude laissait entrevoir à savoir que la présence des aérosols issus de feux de biomasse en stratosphère favorise la formation de PSC et augmente la destruction saisonnière d'ozone. Par ailleurs, la présence d'aérosols carbonés en stratosphère pose question de par leur nature, le carbone n'étant pas une espèce naturellement abondante dans cette couche de l'atmosphère. Son caractère absorbant pourrait par exemple augmenter localement les températures stratosphériques et impacter les processus qui y prennent place.

Ces nouvelles questions scientifiques appellent de nouvelles capacités instrumentales. Si la campagne réalisée à DDU en 2022 a permis d'ajouter deux longueurs d'onde en émission au lidar de DDU et de mettre en place des voies provisoires en réception, la suite de la jouvence de l'instrument reste à réaliser. Celle-ci prévoit notamment l'amélioration des voies et des optiques en réception et l'installation d'une voie Raman UV à 387 nm. Cela dotera le lidar de DDU d'une meilleure capacité de caractérisation des aérosols et nuages mesurés. La possibilité illustrée par cette thèse de restituer les distributions en taille d'aérosols mesurés à DDU permettrait de cartographier les types d'aérosols détectés à la station selon leur nature : aérosols de fond, soufrés et carbonés. De plus, des études récentes ont établi que l'ajout d'une voie de fluorescence à un lidar multispectral permet de statuer sur la nature des aérosols sondés, notamment dans le cas d'aérosols carbonés [Veselovskii et al., 2020, 2022, Hu et al., 2022]. La capacité de fluorescence est un paramètre intensif des aérosols à produire de la fluorescence en réponse à une excitation dans l'ultraviolet. Selon ces auteurs, cet ajout à une configuration lidar augmente significativement la capacité de spéciation de l'instrument dans ses mesures d'aérosols. En outre, la vapeur d'eau ne présentant pas

de capacité fluorescente, cette technique pourrait apporter dans l'étude des PSC et la différenciation des différents types de nuages. L'intégration d'une voie fluorescence à la jouvence du lidar de DDU est donc un sujet de réflexion.

Au-delà de ces possibilités, la restitution de distributions en taille des particules de PSC à DDU est une perspective prometteuse, autant pour l'étude des aérosols que pour statuer sur les seuils de séparation des classes de PSC. Cela serait également riche d'enseignements pour la paramétrisation des PSC dans les modèles climatiques. À notre connaissance, seul le lidar installé à Alomar en Norvège réalise des mesures multispectrales de PSC : la nouvelle configuration du lidar de DDU est donc précieuse puisque les occurrences de PSC en Antarctique sont significativement plus fréquentes qu'en Arctique.

Enfin, dans le contexte du changement climatique, les solutions de géoingénierie suscitent un intérêt grandissant, autant dans les sphères politiques que scientifiques. La géoingénierie est un domaine vaste regroupant une grande diversité de techniques, qui consiste à entreprendre une intervention humaine dans l'objectif de provoquer une réponse choisie du système climatique. La géoingénierie est très controversée à de multiples niveaux et l'objectif de cette thèse n'est nullement de se prononcer à son sujet. Toutefois, un des projets les plus répandus consiste à injecter en stratosphère du soufre en grand quantité afin de provoquer une baisse des températures de surface similaire à celle observée suite à l'éruption historique du Pinatubo. Un tel projet fait évidemment écho aux travaux présentés dans cette thèse et il nous semble important, pour la conclure, de préciser que celle-ci souligne largement les lacunes de nos connaissances sur les conséquences des injections massives d'aérosols soufrés en stratosphère.

Annexe A : 14 years of lidar measurements of polar stratospheric clouds at the French Antarctic station Dumont d'Urville

Florent Tencé, Julien Jumelet, Marie Bouillon, David Cugnet, Slimane Bekki, Sarah Safieddine, Philippe Keckhut, and Alain Sarkissian

Janvier 2023



14 years of lidar measurements of polar stratospheric clouds at the French Antarctic station Dumont d'Urville

Florent Tencé, Julien Jumelet, Marie Bouillon, David Cugnet, Slimane Bekki, Sarah Safieddine, Philippe Keckhut, and Alain Sarkissian

LATMOS, Laboratoire Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales, UMR CNRS, IPSL, Sorbonne University/UVSQ, Paris, France

Correspondence: Florent Tencé (florent.tence@latmos.ipsl.fr)

Received: 7 June 2022 – Discussion started: 17 June 2022

Revised: 30 November 2022 – Accepted: 2 December 2022 – Published: 12 January 2023

Abstract. Polar stratospheric clouds (PSCs) play a critical role in the stratospheric ozone depletion processes. The last 30 years have seen significant improvements in our understanding of the PSC processes but PSC parametrization in global models still remains a challenge due to the necessary trade-off between the complexity of PSC microphysics and model parametrization constraints. The French Antarctic station Dumont d'Urville (DDU, 66.6° S, 140.0° E) has one of the few high latitude ground-based lidars in the Southern Hemisphere that has been monitoring PSCs for decades. This study focuses on the PSC data record during the 2007–2020 period. First, the DDU lidar record is analysed through three established classification schemes that prove to be mutually consistent: the PSC population observed above DDU is estimated to be of 30 % supercooled ternary solutions, more than 60 % nitric acid trihydrate mixtures and less than 10 % of water–ice dominated PSC. The Cloud–Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization PSC detection around the station are compared to DDU PSC datasets and show a good agreement despite more water–ice PSC detection. Detailed 2015 lidar measurements are presented to highlight interesting features of PSC fields above DDU. Then, combining a temperature proxy to lidar measurements, we build a trend of PSC days per year at DDU from ERA5 (the fifth generation of European ReAnalysis) and NCEP (National Centers for Environment Protection reanalysis) reanalyses fitted on lidar measurements operated at the station. This significant 14-year trend of -4.6 PSC days per decade is consistent with recent temperature satellite measurements at high latitudes. Specific DDU lidar measurements are presented to highlight fine PSC features that are often sub-scale to global models and spaceborne measurements.

1 Introduction

Polar stratospheric clouds (PSCs) have been closely investigated for several decades, primarily due to their critical role in stratospheric ozone chemistry. PSC particles are a combination of water vapour (H_2O), nitric acid (HNO_3) and sulfuric acid (H_2SO_4) in different physical states and are often observed as layers featuring different chemical compositions. They form during the winter polar stratosphere when the temperature decreases below specific thresholds related to nitric acid and water vapour freezing points. Their main impact is to enable heterogeneous chemical reactions that convert stable chlorine and bromine reservoirs into active radicals that catalytically deplete ozone in the presence of

sunlight (Solomon, 1999). Denitrification and dehydration, mostly through the uptake of HNO_3 and H_2O by PSCs and the subsequent PSC sedimentation, decrease HNO_3 and H_2O stratospheric concentration and hence enhance ozone depletion (WMO, 2018). Despite major improvements in the recent years due to enhanced research and monitoring capabilities, some PSC-related aspects are still to be understood. Spatial measurements brought a global point of view able to grasp the spatial and temporal distribution of PSC during winter (Pitts et al., 2018). Studies highlighted the need to take wave-induced temperature variations into account to adequately model PSC occurrences (Cairo et al., 2004; Höpfner et al., 2006; Eckermann et al., 2006; Engel et al., 2013;

Tritscher et al., 2019). However, some PSC particle formation pathways are still debated (Tritscher et al., 2021) and the adequate model parametrization of PSCs is still challenging. Besides, the recent stratospheric injections of aerosols caused by volcanic eruptions and wildfires also raise questions on the potential interaction with PSC formation processes and subsequent stratospheric ozone depletion (Tencé et al., 2022; Ansmann et al., 2022; Rieger et al., 2021; Stone et al., 2021).

Depending on pressure, temperature H_2O and HNO_3 gas phase concentrations, and possibly on the abundance of available nuclei, the three key species combine and form different types of particles and clouds. The nuclei are generally stratospheric sulfuric acid aerosols or to a lesser extent meteoritic material, whose role in PSC particles nucleation is still a subject of discussion (Ebert et al., 2016; James et al., 2018). Water–ice crystals (ICE), nitric acid trihydrate (NAT) and supercooled ternary solution droplets (STSs) of H_2O , HNO_3 and H_2SO_4 are the three particle types which have been fully characterized in laboratory studies (Koop et al., 2000; Hanson and Mauersberger, 1988; Carslaw et al., 1997). Ice particles can nucleate both homogeneously and heterogeneously depending on the temperature and air mass history, while NAT particles only nucleate on pre-existing particles (Koop et al., 1995, 1997; James et al., 2018). STS droplets form by the uptake of atmospheric gas phase HNO_3 by sulfuric acid aerosols. PSCs are generally composed of a mixture of these base particles. Depending on their dominant type of particles, different PSCs have different surface area densities and chemical heterogeneous reactivities and therefore different levels of halogen activation. Ice crystals are known to be the most efficient in chlorine activation. However, since they are relatively rare, most of the chlorine activation occurs on or in liquid particles (Abbatt and Molina, 1992; Hanson and Ravishankara, 1993; Wegner et al., 2012; Tritscher et al., 2021). The efficiencies of STS, NAT, ICE particles and stratospheric aerosols to activate chlorine are compared as a function of temperature in Fig. 39 of Tritscher et al. (2021).

From these three basic particle types and their combinations, more detailed types of PSCs were identified for the purpose of creating classifications based on optical properties of the pure STS, NAT and ICE blends of chemical compounds. The first was published by Poole and McCormick (1988). Since then, several classifications have been proposed, listing different types of clouds based on different sets of variables (Browell et al., 1990; Toon et al., 1990; Stein et al., 1999; Santacesaria et al., 2001; Adriani et al., 2004; Massoli et al., 2006; Blum et al., 2005; Pitts et al., 2009, 2011, 2013, 2018). Over the years, these schemes became more complex as STS, NAT and ICE base types could not explain alone the full extent of observed PSC characteristics and resulted in high proportions of unclassified measurements (up to 30%; Achtert and Tesche, 2014). Additionally, some of the early classification schemes included thermodynamically unstable species at stratospheric conditions which were sometimes detected

in laboratory experiments, notably sulfuric acid tetrahydrate (SAT) or nitric acid dihydrate (NAD), but have yet to be confirmed by atmospheric observations. Studies showed that PSC type identification depends on the history of the air masses due to hysteresis effects on PSC formation along the temperature scale (Larsen, 2000). In addition, the temperature cooling rate is an important variable driving orographic PSC formation in both the Arctic and Antarctic (Noel and Pitts, 2012).

Overall, the modelling community has not been able to take full advantage of complex PSC classification schemes as most models often have only a few variables to resolve PSC microphysics. Therefore, the combination of model constraints and the high rate of unclassified observations (due to either instrumental concerns or unequilibrated particles) led to some redefinition of the boundaries between the existing PSC classes rather than considering additional classes. The PSC classification schemes previously mentioned are based on ground-based or spaceborne lidar measurements. While in situ measurements with balloons or stratospheric aircraft are highly valuable, they remain rare. Lidar instruments, both ground-based and spaceborne, are more appropriate to study PSCs as they provide extremely high vertical and time resolution data at the cost of a heavy inversion procedure (i.e. as compared to direct particle counters) needed to retrieve the optical properties.

Achtert and Tesche (2014) presented a comprehensive review of the PSC classification schemes. Their study shows that these classifications can lead to very different outcomes when applied to a single dataset. As these classifications are often derived from a single instrument, they are likely to carry their own biases and prevent quantitative comparisons with other datasets carrying other biases related to different instrumental setups. Also, different sets of variables have been used to interpret the measurements and the lack of homogeneity in lidar data processing and in the definition of some optical properties make intercomparisons between different studies more difficult. Following the conclusions of Achtert and Tesche (2014), we decided to consider three different classifications proposed by Blum et al. (2005) (hereafter called B05), Pitts et al. (2011) (hereafter called P11), and an updated version of P11 (Pitts et al., 2018, hereafter called P18).

These classifications are used to analyse the lidar measurements conducted at the French Antarctic station Dumont d'Urville (DDU, 66.6° S, 140.0° E). DDU is located on the shore of the continent and therefore often lies at the edge of the polar vortex. The station has hosted a stratospheric lidar since 1989, making it one of the very few Antarctic station with a long-term lidar data record. Considering the latest laser source replacement in 2005 and the continuous monitoring from 2006, DDU PSC dataset is compared to the spaceborne PSC measurements conducted by CALIOP (Cloud–Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization) in the vicinity of the station, from 2007 to 2020. Two of the major

roles of a ground station are to perform process studies and establish decadal trends. Such trends are highly valuable because they reflect the evolution of the stratosphere in terms of temperature and chemical compositions. In this study, DDU lidar measurements are exploited to produce a trend of PSC days per year at DDU.

Section 2 presents the data and instruments exploited in this study. Section 3 introduces the PSC detection methods as well as the considered classification schemes. Section 4 exposes the results of the study. First, the outcomes of the application of the classification schemes B05, P11 and P18 to the DDU lidar data record are presented and discussed, and CALIOP and DDU PSC measurements are compared. Then the analysis of an interesting example of a long lidar session is used to illustrate the unique capabilities of lidar measurements in characterizing very fine vertical features in PSC fields. Third, lidar measurements and temperatures from ERA5 (the fifth generation of European ReAnalysis), NCEP (National Centers for Environment Protection reanalysis) and infrared atmospheric sounding interferometers (IASIs) are combined to produce a PSC occurrence trend from 2007 to 2020. To support the use of these temperature data sources, they are compared to temperatures from radiosondes launched daily at DDU. Finally, some challenges of PSC parametrization in climate models are discussed before exposing the main conclusions.

2 Data and instruments

2.1 Dumont d'Urville Lidar

An aerosol/cloud lidar system has been in operation at DDU since April 1989 in the framework of the Network for Detection of Atmospheric Composition Changes (NDACC). Originally designed as a PSC monitoring instrument, its capabilities have been extended to study aerosol/cirrus clouds in the Antarctic atmosphere, benefiting from continuous technological upgrades of its different subsystems. Although the measurement calendar focuses on the PSC season with nighttime setup, recent work on aerosol plumes either originating from volcanic or biomass burning activity (Tencé et al., 2022) suggests extending the measurement calendar to the summertime. Figure 1 shows the amount and duration of the lidar measurement sessions. Figure 1a shows the recent increase in amount of measurements triggered by the new focus on aerosol plumes detection. Figure 1b shows that while 90 min is the minimum duration of operation, sessions can reach more than 6 h during winter.

The Rayleigh/Mie/Raman lidar operates at the 532 nm wavelength. N₂ vibrational Raman backscattering at 607 nm is also acquired. An extensive description of both the instrumental design and inversion procedure is featured in David et al. (2012). The Nd:YAG laser source emits at 10 Hz frequency with around 250 mJ emitted power in the visible. Backscattered photons are collected on a collocated 80 cm

diameter Newton telescope. A polarizing cube at the reception splits the beam into two components polarized parallel and perpendicular to the laser emission for the 532 nm wavelength; each component is recorded and inverted to gain access to the depolarization ratio. In this study, we use the aerosol depolarization value defined as the ratio between the perpendicular and parallel particulate backscatter coefficients. Aerosol vertical profiles will be considered as Backscatter Ratio or Scattering Ratio profiles (hereafter called R_T) expressed as the ratio of the total backscattering (i.e. including Mie Scattering) to the molecular backscattering at a given altitude. The different lidar-related variables used in this study are defined as follows, as a function of the parallel and perpendicular molecular backscatter coefficients ($\beta_{\text{mol},\parallel}$ and $\beta_{\text{mol},\perp}$ respectively) and of the parallel and perpendicular particulate backscatter coefficients ($\beta_{\text{aer},\parallel}$ and $\beta_{\text{aer},\perp}$ respectively):

$$R_T = \frac{\beta_{\text{aer},\parallel} + \beta_{\text{aer},\perp} + \beta_{\text{mol},\parallel} + \beta_{\text{mol},\perp}}{\beta_{\text{mol},\parallel} + \beta_{\text{mol},\perp}}. \quad (1)$$

The parallel and perpendicular backscatter ratio (R_{\parallel} and R_{\perp}), are defined as

$$R_{\parallel} = \frac{\beta_{\text{aer},\parallel} + \beta_{\text{mol},\parallel}}{\beta_{\text{mol},\parallel}} \quad (2)$$

$$R_{\perp} = \frac{\beta_{\text{aer},\perp} + \beta_{\text{mol},\perp}}{\beta_{\text{mol},\perp}}. \quad (3)$$

The linear particle depolarization ratio is defined as

$$\delta_{\text{aer}} = \frac{\beta_{\text{aer},\perp}}{\beta_{\text{aer},\parallel}} = \frac{R_{\perp} - 1}{R_{\parallel} - 1} \delta_{\text{mol}}, \quad (4)$$

where $\delta_{\text{mol}} = \frac{\beta_{\text{mol},\perp}}{\beta_{\text{mol},\parallel}}$ is the depolarization ratio of the molecular background and depends on the lidar used. Depending on the width of the interference filter used on the 532 nm channel, some lidars only detect the central Cabannes line, while other instruments also detect the shifted Raman lines. The interference filter used for DDU lidar has a full width at half maximum (FWHM) of 1 nm bandwidth, and therefore the corresponding molecular depolarization parameter is set to $\delta_{\text{mol}} = 0.443\%$ (Behrendt and Nakamura, 2002).

Finally, the total perpendicular backscatter coefficient can be expressed as follows:

$$\beta_{\text{tot},\perp} = \beta_{\text{aer},\perp} + \beta_{\text{mol},\perp} = \beta_{\text{aer},\perp} + \frac{\beta_{\text{mol}}}{1 + \frac{1}{\delta_{\text{mol}}}}. \quad (5)$$

Potential saturation effects in the troposphere as well as background noise at mesospheric altitudes are removed from lidar signals. The best time integration window is selected based on the homogeneity of the scene featured on the non-corrected for extinction backscattering ratio. Finally, signal inversion is performed using the Klett–Fernald formalism (Klett, 1981, 1985; Fernald, 1984) to derive individual

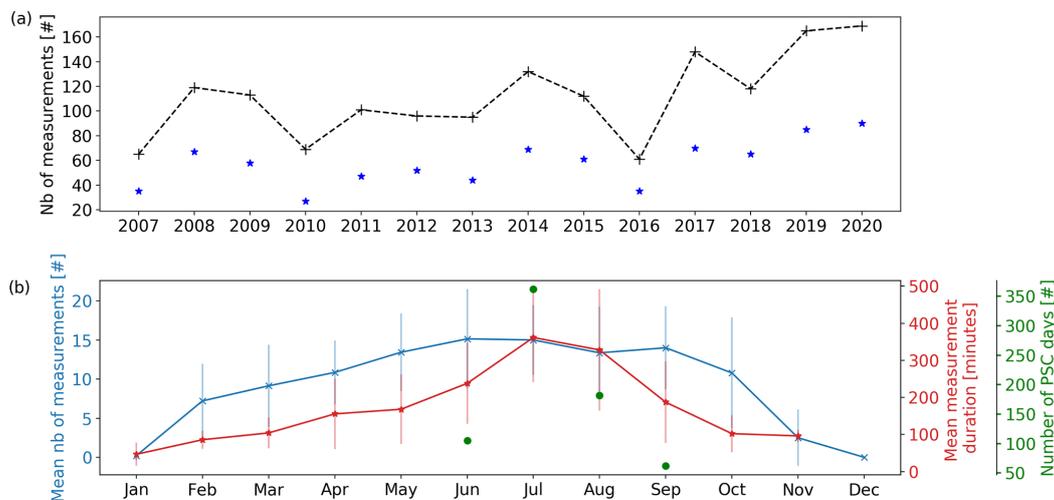


Figure 1. Operation statistics of DDU lidar. (a) Number of measurement days per year (black line) and per winter (blue stars) from 2007 to 2020 and (b) mean number (blue line) and duration (red line) of measurement sessions per month, in minutes, from 2007 to 2020. Total number of PSC days at DDU in June, July, August and September between 2007 and 2020 (green circles).

R_T profiles. The lidar inversion at stratospheric altitudes is highly sensitive to the molecular density and the clear-air reference altitude. ERA5 daily meteorological data are used for data processing and clear-air altitude is set between 28 and 32 km according to the signal dynamics.

The total uncertainty on the R_T is estimated to be around 7 % on the parallel channel R_{\parallel} up to 28 km, with details available in Tencé et al. (2022). On the perpendicular channel and associated R_{\perp} backscatter ratio, the altitude-dependent uncertainty ranges from 10 % to 30 %. As for the depolarization ratio $\delta(z)$, assuming larger uncertainties on the aerosol depolarization ratio $\delta(z)$ rather than on the linear volume depolarization ratio at relevant altitudes in this paper we estimate the error of around 30 % (Tencé et al., 2022).

2.2 Cloud–Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization (CALIOP)

Since 2006, the Cloud–Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization (CALIOP) conducts spatial lidar measurements aboard the Cloud–Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation (CALIPSO) satellite. CALIPSO flies on the A-train constellation and offers a precious global coverage of the stratosphere, reaching the 82° latitude line in both hemispheres. CALIOP operates at 1064 and 532 nm and is equipped with a polarization channel at 532 nm. More information on the CALIPSO mission and CALIOP specificities can be found in Winker et al. (2009). CALIOP measurements have been very important for PSC studies and were used for the design of classification schemes considered in this study (Pitts et al., 2011, 2018).

2.3 IASI temperature product

The infrared atmospheric sounding interferometers (IASI) are a series of instruments flying onboard the Metop satellites on a sun-synchronous orbit. They were launched in 2006 (IASI-A, end of life in 2021), 2012 (IASI-B) and 2018 (IASI-C). Each instrument observes the Earth–atmosphere system with scans of 2200 km. Each scan contains 30 fields of view, each field of view containing 4 pixels. This observation mode allows each IASI instrument to observe every place on Earth twice a day, at 09:30 and 21:30 UTC (Clerbaux et al., 2009).

The IASI instruments are Fourier transform spectrometers that measure spectra of the Earth and atmosphere infrared radiance between 645 and 2760 cm^{-1} (3.62 and 15.5 μm) in each pixel. The atmospheric temperature profiles can be retrieved from the radiances observed in the carbon dioxide absorption bands at 700 and 2300 cm^{-1} . Bouillon et al. (2022) computed atmospheric temperatures in 10 atmospheric layers between 750 and 7 hPa by first selecting IASI’s most sensitive channels to temperature and then by using the radiances in these channels as input for an artificial neural network (ANN). The ANN was trained using IASI radiances as input and the matching ERA5 temperature profiles as output. The validation of the ANN output against ERA5 and radiosoundings observations showed very good agreement between the three datasets between 750 and 7 hPa. Bouillon et al. (2022) showed that daily zonal mean differences between IASI ANN and ERA5 at mid and high latitudes are lower than 0.5 K between 750 and 7 hPa and reach 2 K at 2 hPa. Comparing IASI ANN with a global radiosoundings archive (Analyzed RadioSoundings Archive), Bouillon et al. (2022) found no significant bias and a standard deviation be-

tween 1 and 2 K for the Antarctic region. A 13-year time series (2008–2020) was constructed with this method, using IASI-A observations from 2008 to 2017 and IASI-B observations from 2018–2020.

2.4 Reanalysis products – ERA5 and NCEP

As discussed in further detail in the following sections, reanalysis temperature products are often used to complement or replace local radiosonde measurements for both data processing and interpretation of ground-based lidar measurements. For this study, two reanalysis products are considered: the fifth generation of the reanalysis product of the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF), hereafter called ERA5, and the reanalysis produced by the National Centers for Environmental Protection (NCEP) and the National Center for Atmospheric Research (NCAR), hereafter called NCEP.

ERA5 is a four-dimensional variational data assimilation (4D-Var) product fully available since January 2019. It is based on the Integrated Forecasting System (IFS) Cy41r2 and provides records of the atmosphere, land surface and ocean waves from 1979 onwards. A detailed description of ERA5 can be found in Hersbach et al. (2020). The temperature product used in this study is gridded on 35 pressure levels (from 975 to 2 hPa) and is 4× daily product, meaning it is available everyday at 00:00, 06:00, 12:00 and 18:00 UTC. The product is interpolated to the DDU location and the original horizontal resolution is $0.25^\circ \times 0.25^\circ$. Since ERA5 will be compared with IASI temperature data further in this paper, it should be specified that ERA5 assimilates the measurements of IASI, among other instruments. The interpolation of ERA5 at DDU is also used to calculate the dynamic tropopause, defined as the lowest point between the 380 K potential temperature and $|PV| = 2$ PVU (calculated from the vorticity, the winds and the temperature from ERA5), which is the tropopause used throughout this study.

NCEP reanalysis product was made available in May 1994 and provides data records from 1957 onwards. Extensive description of the reanalysis is available in Kalnay et al. (1996). This product is available daily at 00:00 UTC and provides direct extraction of the temperature product above DDU.

3 Data processing and classifications

3.1 PSC detection by DDU lidar

Before the inversion procedure, lidar data are first pre-processed to adequately set the integration window of the individual 3 min raw files ensuring homogeneity of the lidar scene, either being dominated by clear-air or aerosol/cloud presence. To do so, a preliminary inversion assuming no particulate extinction is performed on 15 min blocks to derive a non-corrected for extinction backscattering ratio. A clear sky or aerosol/cloud presence tag is applied to this prelimi-

nary product and the 3 min raw files are summed accordingly. This pre-processing bypasses the spatio-temporal smoothing necessarily induced by blending in clear-air before or after any cloud detection and leads to a better signal to noise ratio (SNR).

Once the total backscatter ratio and particle linear depolarization ratio profiles are obtained, a peak detection algorithm is performed on both profiles to identify potential scattering layers. Results are combined to produce a set of layers corresponding to the peaks. For each of these layers, the relevant parameters for each classification scheme are computed ($[R_T, R_{\parallel}]$, $[R_{\perp}, R_{\parallel}]$ and $[R_T, \beta_{\text{tot}, \perp}]$) and a type (cirrus, aerosol or one of the PSC types) is attributed to each vertical bin of the layer. Finally, layers that are separated by 300 m or less are merged, which is reasonable given the climatological reality of PSC fields we observe, the lidar vertical resolution of 60 m and the smoothing applied. Up to five stratospheric layers per profile are retained, sorted according to their total backscatter R_T and aerosol depolarization δ values.

3.2 PSC detection by CALIOP

CALIOP measurements are compared to the ground-based lidar measurements acquired at DDU. The method for this comparison is inspired by Snels et al. (2021). The “PSC Mask v2” product provided by CALIOP sorts PSC observations according to the P18 scheme. This product is extracted in an area of 100 km around DDU, from 2007 to 2020 and from June to September. For every orbital track inside this area, the closest profile to the station is kept to allow an equal representation of each orbital track passing near DDU.

PSC Mask v2 has a vertical resolution of 180 m. The full PSC detection method used by CALIOP is described in Pitts et al. (2018). We highlight here a few specificities of this method that are important for our study. To avoid detection errors caused by signal noise, CALIOP applies a coherence criterion that only sorts a vertical bin as PSC if “more than 11 of the points in a 5-point horizontal by 3-point vertical box centred on the candidate exceed the current PSC detection threshold or have been identified as a PSC at a previous (finer) averaging scale” (Pitts et al., 2018). To mimic this criterion for a ground-based lidar, Snels et al. (2021) imposes that at least five consecutive bins are considered as PSC to sort a candidate as PSC. Also, to be consistent with the method used by Snels et al. (2021), we only consider the vertical bins between 12 and 26 km.

A major difference between the CALIOP PSC detection method and our method needs to be mentioned. CALIOP classifies each vertical bin separately, while we only classify the layers that have been identified by a peak detection algorithm performed on R_T and δ_{aer} . Despite CALIOP coherence criterion and the noise-dependent threshold, we consider that classifying each vertical bin separately is too sensitive to inversion errors, especially in the case of a ground-based lidar with no horizontal coherence to be accounted for. Also, such

a method allows the assignment of different PSC types from one 180 m bin to another. Considering the vertical resolution of CALIOP and the scale of PSC layers, assigning a type A then B then back to A to three consecutive bins does not seem realistic to us. Though the PSC detection methods are different, both include a thickness weighting of the layers classified so the comparison is valid.

3.3 Classification schemes

As described in the introduction, PSC classification is challenging. It is, however, critical as PSC class directly translates into chemical efficiency in stratospheric ozone chemistry simulation. Relating thermodynamical or microphysical thresholds to optical ones is challenging in essence. Literature classifications actually feature different and legitimate thresholds separating some particle types, some of them we discuss hereafter. The purpose of this section is notably to provide the community with a PSC distribution for which consistency has been checked using different observational parameters and thresholds. Applying different classification schemes emphasizes the variability and, in turn, consistency of our distribution. As mentioned in the introduction, the classifications B05 and P11 are considered here following the conclusion of Achtert and Tesche (2014), to which we had P18, the update of P11 published in 2018.

B05 is based on the measurements of the ground-based lidar located at Esrange, Sweden, conducted between 1996 and 2004. B05 relies on R_{\parallel} , R_{\perp} and δ_{aer} , the latter being related to R_{\parallel} and R_{\perp} via Eq. (4). This classification sorts PSC measurements into NAT, STS, ICE and MIX, the latter being a mixed-type one. The threshold separating PSC layers from background aerosols in B05 is $R_{\parallel, \text{thresh}} = 1.06$. As for the reference properties, NAT clouds are composed of non-spherical crystals and thus exhibit an important depolarization ratio ($\delta_{\text{aer}} > 10\%$) and low parallel backscatter ratio ($R_{\parallel} < 2$). STS PSC are spherical liquid droplets theoretically producing no depolarization and a moderate parallel backscatter ratio ($R_{\parallel} < 5$). ICE clouds, due to being dominated by large ice crystals close to the granulometry of cirrus clouds, are associated with depolarization ratios most often largely above 2% and R_{\parallel} between 2 and 7, or only $R_T > 7$. The MIX class theoretically gathers all PSC measurements not fitting the three previously introduced types: they cover several different physical or chemical states. B05 types and thresholds are summed up in Fig. 2a.

P11 is based on lidar satellite measurements from CALIOP. This scheme relies on R_T and δ_{aer} . While P11 uses these two variables to sort the PSC types it is worth mentioning that R_T and $\beta_{\text{tot}, \perp}$ are used to detect PSC layers from the lidar profiles. P11 lists five different types: STS, ICE, NAT-Mix1 (MIX1), NAT-Mix2 (MIX2) and Mixed-enhanced (ENH). ENH particles are most often related to the orographic features that are not expected to be frequent above DDU (Tsias et al., 1999). STS and ICE correspond

to the same definitions as in B05, even if the variables used and the corresponding thresholds change. However, the B05 MIX category does not correspond to the mixed categories involved here. P11 types and thresholds are summed up in Fig. 2b. Two thresholds are not specified in Fig. 2b: the δ_{aer} threshold between ICE and STS, which is a boundary decreasing linearly from $\delta_{\text{aer}, \text{STS}} = 0.7\%$ to 0% as R_T increases. The separation between MIX1 and MIX2 is thoroughly described in Pitts et al. (2009) and comes from optical calculations. This boundary sorts PSCs according to their NAT number density or volume: clouds with low NAT number density or low NAT volume will most likely be MIX1 while high NAT number density or high NAT volume will be sorted as MIX2 (Pitts et al., 2009).

Using spaceborne lidar measurements, a lower signal-to-noise ratio as compared to ground-based measurements is expected, counterbalanced by the sheer amount of profiles acquired over time, once again compared to the ground-based setup. Horizontal averaging as well as a short time integration also contribute to increase noise significance for spaceborne measurements. This is the reason why, following the recommendation of Achtert and Tesche (2014), some thresholds used in P11 should be adapted when applied to ground-based measurements. The adapted thresholds are shown in Fig. 2b. The R_T threshold between background and PSC layers is lowered from 1.25 to 1.1. While Achtert and Tesche (2014) advocates the use of $\delta_{\text{aer}, \text{STS}} = 0.4\%$ for the STS upper limit of depolarization, we set it to $\delta_{\text{aer}, \text{STS}} = 0.7\%$ in order to be consistent with B05, also considering it is a ground-based setup. P11 original value was $\delta_{\text{aer}, \text{STS}} = 3.5\%$.

P18 is also based on CALIOP and is the update of P11. It still relies on R_T but now considers $\beta_{\text{tot}, \perp}$ instead of δ_{aer} . As mentioned previously, P11 already used $\beta_{\text{tot}, \perp}$ for layers detection. P18 still features STS, ICE and ENH types, but P11 types MIX1 and MIX2 have been merged in a single category, NAT-mixtures (NATmix). The main update between P11 and P18 is that the latter includes three dynamically computed thresholds. Instead of having fixed values, they depend on the uncertainty of each measurement or on the abundance of relevant atmospheric species, H_2O and HNO_3 . Such dynamic thresholds are well-adapted to a spaceborne lidar which experiences various atmospheric conditions. The three thresholds concerned are $R_{T, \text{thresh}}$, $\beta_{\text{tot}, \perp, \text{STS}}$ and $R_{T, \text{ICE}}$. P18 types and thresholds are summed up in Fig. 2c.

In P18, measurement uncertainties are computed with CALIOP-based methods (Liu et al., 2006; Hostetler et al., 2006). When adapting P18 to DDU lidar measurements, we somewhat simplified the dynamic thresholds: $R_{T, \text{thresh}}$, the R_T boundary separating background measurements from PSC layers was fixed at $R_{T, \text{thresh}} = 1.1$ as in P11, following the conclusion of Achtert and Tesche (2014). The threshold $\beta_{\text{tot}, \perp, \text{STS}}$ separating STS droplets or aerosols from NAT particles and ICE crystals was also fixed but with a dependence on altitude. The $\beta_{\text{tot}, \perp, \text{thresh}}$ profile was defined as mean + 1 standard deviation of all $\beta_{\text{tot}, \perp}$ values corresponding to back-

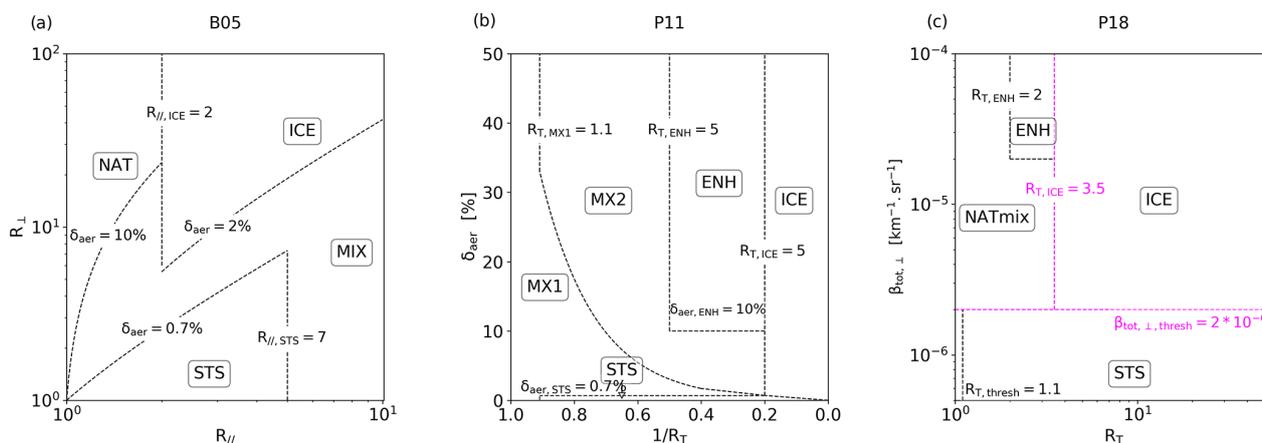


Figure 2. The three classification schemes considered in the paper: B05 (a), P11 (b) and P18 (c). The relevant thresholds are specified. The two dynamic thresholds are coloured in fuchsia and the given values are only for visualization purposes.

ground and STS measurements at DDU, per 1 km vertical interval. To do so, B05 and P11 classifications were used. The $\beta_{\text{tot},\perp,\text{thresh}}$ profile, not shown here, displays a strong altitude dependency: in the stratospheric range of PSC occurrences, the threshold variation range spans two orders of magnitude.

In P18, the $R_{T,\text{ICE}}$ value separating NAT mixtures and ENH from ICE is calculated from the nearly coincident H_2O and HNO_3 Microwave Limb Sounder (MLS) measurements, Aura and CALIPSO satellites being both on the A-train constellation. From H_2O and HNO_3 total abundances, theoretical calculations of R_T lead to a dynamic $R_{T,\text{ICE}}$ threshold. The change of R_T NAT/ICE limitation between P11 and P18 is significant: from $R_{T,\text{ICE}} = 5$ in P11 to $R_{T,\text{ICE}}$ in [2.75–4] in P18. Such a change has direct impact on classification outcomes. We choose to use the $R_{T,\text{ICE}}$ values provided by CALIOP in the PSC Mask v2 product. For each DDU lidar measurement, the $R_{T,\text{ICE}}$ value was taken from the closest CALIOP profile in time and space in the 100 km radius area around the station.

The wave–ice category defined in P11 and P18 ($R_T > 50$) was ignored since it is not relevant above DDU. ICE PSC induced by orographic gravity waves are very unlikely to be observed at DDU due to its location, and it indeed was never detected.

Most of the published classifications, including B05 and P18, feature a mixed-type category. Mixed-type clouds may actually describe different physical realities: a MIX cloud type layer may actually be a fine stack of chemically different layers (finer than the instrumental final vertical resolution of the classification algorithm) or it can also be the signature of particles outside the thermodynamical equilibrium and actually be evolving along with temperature. The lidar geometry is such that only a small atmospheric air column is probed above the instrument and therefore high variability is expected at stratospheric altitudes with the speed of air masses and different equilibration times for PSC particle

population. These non-equilibrium particles therefore need to be classified, and it is thus expected that they represent a significant part of observations, regardless of the classification scheme.

4 Results

4.1 Two-variable classification

Before discussing the distributions of PSC types at DDU according to B05, P11 and P18 classification schemes, we provide statistics on CALIOP PSC detections around DDU using the method described in the previous section and inspired by Snels et al. (2021). The Concordia station, focus of the Snels et al. (2021) study, is located 1000 km deeper into the Antarctic continent, whereas DDU has a littoral position and is often located at the edge of the polar vortex. As a result, PSC observations at DDU are lower than at Concordia. Within a distance of about 100 km around Concordia from 2014 to 2018 and from June to September, Snels et al. (2021) finds 369 available CALIOP orbits, 88 of which do not include any PSC. From 2007 to 2020, using the same criteria, only 392 orbits are found around DDU, 299 of which do not include any PSC. This highlights the small number of CALIOP orbits available in the domain around DDU, as was also pointed out by Tesche et al. (2021, Fig. 8). Among these orbits, the proportion of PSC is also significantly lower at DDU than at Concordia. This is illustrated by Fig. 7 of Tesche et al. (2021) who identify 74115 vertical bins in a $4^\circ \times 4^\circ$ domain around Concordia and only 7056 around DDU, based on the Antarctic winters of 2012 and 2015. This is a reminder of the marginal position of DDU with respect to the polar vortex and highlights the difficulty of comparing measurements acquired in this area with those from CALIOP due to the small number of compatible measurements.

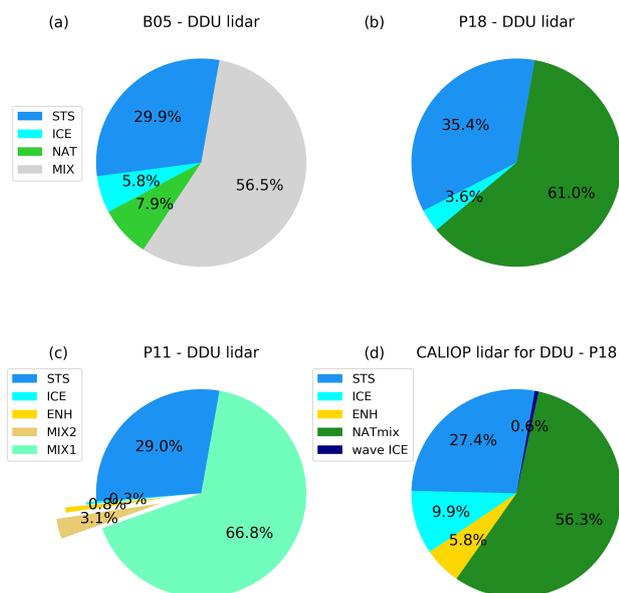


Figure 3. PSC types distribution observed at DDU for the three considered classifications: B05 (a), P18 (b), P11 (c) and observed by CALIOP extracted around DDU using P18 scheme (d).

The PSC types distribution resulting from the application of DDU PSC measurements using B05, P11 and P18 schemes are shown in Fig. 3. The distribution of PSC types at DDU based on CALIOP measurements and P18 scheme is also included in Fig. 3d. To make the comparison valid, we restricted our analysis to the months of June, July, August and September. Figure 3 globally shows a very good agreement between the studied classification schemes. First, the STS abundance is in very good agreement in all cases: between 27.4 % and 35.4 %. In order to compare the abundance of NAT and NAT mixtures in each classification, the relative abundance of NAT and mixed categories was summed for each scheme, as proper comparison needs to account for the differences in the schemes. For B05, NAT + MIX types weight 64.4 %. For P11, MIX1 + MIX2 + ENH types account for 70.7 % of all PSC types. For the distributions based on P18, NATmix + ENH categories make up for 61 % and 62.1 % of the total for the datasets based on DDU lidar and CALIOP measurements respectively. These small differences reflect the discrepancies between the ICE proportions in all schemes.

The ICE abundance presents an important variability among the four diagrams. The first reason for this variability comes directly from the thresholds considered: as it was previously highlighted, the evolution of $R_{T,ICE}$ from P11 to P18 is significant and explains an important discrepancy between the resulting ICE percentages. B05 classifies a PSC as ICE if $\delta_{aer} > 2\%$ and $R_{||}$ in $[2, 7]$, or if $R_T > 7$. Furthermore, the actual definition of R_T as $\frac{R_{||} + R_{\perp} \times \delta_{mol}}{1 + \delta_{mol}}$ considering a very

low $\delta_{mol} = 0.00443$ leads to clear dominance of $R_{||}$ in R_T . Consequently, the ICE definition in B05 is more permissive than in P11 and P18 to a lesser extent: some PSCs are classified as ICE in B05 while they are considered as NAT in P11 and P18, which is consistent with the differences observed in Fig. 3.

The PSC types distribution based on CALIOP measurements around DDU and P18 scheme displays 9.9 % of relative abundance for the ICE type. As this is based on P18, the previous remark on the role of the ICE threshold in P18 still applies here. However, the ICE share in Fig. 3d is still higher than in Fig. 3b. The difference most likely comes from the point of view of both lidars and different operational constraints. CALIOP, being a spaceborne lidar, directly accesses the stratosphere whereas a ground-based instrument sounds the troposphere before reaching it. As for our system, and for instrumental safety concerns, the system is not operated in case of thick tropospheric cloud cover. In fact, studies in the Arctic and the Antarctic suggest a correlation between tropospheric cloudiness and ICE PSC occurrences (Achtert et al., 2012; Adhikari et al., 2010). Overall, the presence of thick tropospheric clouds is thought to help in reaching PSC-enabling stratospheric temperatures. This reasoning plainly explains the lesser ICE observations above DDU from the ground as compared to CALIOP. Between 2007 and 2020, CALIOP detected ICE PSC above DDU on 19 different days, out of which 4 correspond to DDU measurements, suggesting a possible important tropospheric cover or bad weather condition hindering operations. However, we do not consider this small sample robust enough to support the analysis. Still, ICE PSC occurrences are expected to remain marginal among PSC observations at DDU as the station is located at the edge of the polar vortex and far from orographic gravity wave sources. This small ICE abundance at DDU is supported by Pitts et al. (2018).

At McMurdo Antarctic station (77.85° S, 166.66° E), from 2006 to 2010, Snels et al. (2019) reported a mean distribution of 13.8 % STS, 71.6 % NATmix, 2.6 % ENH and 12 % ICE. During this period, CALIOP observed approximately 10 % more STS and 10 % less NATmix and otherwise shows a good overall agreement with the ground-based lidar. Snels et al. (2021) compare Concordia ground-based PSC detections to CALIOP measurements around the station from 2014 to 2018. This study mainly focuses on the agreement between ground-based and spaceborne instruments and does not directly provide the PSC type distribution observed at Concordia by the local lidar but still shows the distribution observed by CALIOP around the station. From 2014 to 2018, the yearly occurrences of STS represent from 14 % to 38 %, NATmix from 42 % to 67 %, ENH from 5 % to 11 % and ICE from 10 % to 28 %. The distribution shows a high annual variability, but we still can point out differences with DDU PSC types distribution. Both McMurdo and Concordia measurements feature a higher proportion of ICE detections and less STS observations as compared to DDU. The 38 %

STS share observed at Concordia in 2014 is considered to be an outlier. This is consistent with the results of Fig. 19 of Pitts et al. (2018) which show that main area of ICE occurrence is located inside the continent while DDU is located on the Antarctic coast. The temperature necessary to form ICE crystals is reached less often at DDU, on the edge of the vortex.

The distribution of DDU PSC measurements in B05, P11 and P18 classifications is shown in Fig. 4 and presents where the measurements are concentrated, providing another point of view on the classification thresholds. In Fig. 4a and b, it is worth noting that the distribution displays an increase slightly below the STS depolarization threshold. For B05, the absence of measurements along the bottom x axis is most likely the sign of a small crosstalk noise. Then, it appears that most of the measurements are classified as MIX in B05. This is consistent with Fig. 5b from Achtert and Tesche (2014) which also exhibits high densities in the MIX classes. Given the 10 % depolarization threshold and the relatively low amount of NAT clouds identified by B05, we consider that B05 classifies as NAT the PSCs that are only composed of, or highly dominated by, NAT particles. Whereas P11 and P18 separate NAT mixtures into MIX1, MIX2 and NATmix which may include a significant share of STS droplets.

As for ICE clouds, B05 characterizes significantly more ICE measurements as compared to P11 and P18, where they remain marginal. The relatively low number of ICE events we report relates to the fact that ICE PSC fields above DDU are more unstable than those remaining deep inside the vortex. The optical properties of the ICE clouds observed at DDU are thus expected to be closer to the respective boundaries of the scheme, and this overall lead to greater variability in characterization among the different schemes. As an illustration, we take the PSC event detected on 11 July 2011 with a depolarization ratio of 3.6 % and a total backscatter ratio of 2.3 ($R_{\parallel} = 2.034$ and $R_{\perp} = 9.43$). B05 classifies it as ICE while P11 and P18 classify it as MIX1 and NATmix respectively. From Fig. 4b and c, we conclude that the ENH class is marginal at DDU and is rarely detected. Still, CALIOP classifies 7.1 % of the PSC detections around DDU as ENH. This is likely due to higher $\beta_{\text{tot},\perp}$ values measured by CALIOP than by DDU lidar or to a difference in the $\beta_{\text{tot},\perp,\text{thresh}}$ threshold used, as Fig. 4c shows it.

The distribution of PSC layers as a function of temperature and altitude was computed for B05, P11 and P18 for STS, NAT + mix and ICE clouds. The category NAT + mix gathers all types related to NAT particles or mixed categories, i.e. NAT + MIX for B05, MIX1 + MIX2 + ENH for P11 and NATmix for P18, as it is the best way to compare B05, P11 and P18 outcomes. The distributions were computed using kernel density estimation, also referred to as Parzen–Rosenblatt method, a non-parametric method used to estimate probability density functions of a given sample (Rosenblatt, 1956; Parzen, 1962). The distributions for each classification scheme and PSC type are shown in Fig. 5.

For each PSC measurement, MLS H₂O and HNO₃ concentrations are used to compute the relevant threshold temperatures. These temperatures are called T_{NAT} , T_{STS} and T_{ICE} hereafter. T_{STS} relates to a change in the composition of the aerosols and we considered a 50 % volume mixing ratio of HNO₃ in the condensed phase. Figure 5 presents the distribution of PSC measurements as a function of altitude and temperature relative to the relevant type threshold.

Temperature is not a variable in our PSC detection method, yet we note that most NAT + mix measurements are below the T_{NAT} threshold within expected uncertainties related to MLS and ERA5 data. Considering STS, it appears that temperatures are above the threshold for all schemes. This is partly expected as T_{STS} is not associated with a discrete physical phase transition but with a continuous chemical composition change within the droplet. Finally Fig. 5 highlights again that the major difference among classification schemes concerns the ICE category as the three patterns of Fig. 5g, h and i show very different shapes. It is important to read the ICE related plots with caution as the densities are computed from a reduced number of points. It appears however that P11 classifies few PSCs as ICE but those are in the adequate temperature range while B05 and P18 sort most of the ICE PSCs above T_{ICE} .

Figure 5 also shows that the different types have slightly different altitude domains. All classifications agree in that STSs mostly form between 15 and 20 km, while ICE are usually detected around the average 20 km altitude. NAT + mix category occupies a wider domain, from 15 to 25 km. Since this category includes mixtures, it is not surprising that its range is actually wider. As a reminder B05 defines the MIX category as any measurement not belonging to any of the other classes.

Finally, temperature values associated with PSC types gathered in Fig. 5 are derived from ERA5 reanalyses and are relevant for the intercomparison of the classification schemes, but they may not resolve small-scale variations or features that are important for PSC formations pathways. Also, the time of lidar PSC measurement does not exactly match ERA5 data and MLS H₂O and HNO₃ measurements, which necessarily generates uncertainty. The relevancy of ERA5 reanalyses in the study of PSC at DDU is reviewed in Sect. 4.3.

4.2 Sample PSC event of interest: 28 August 2015

Figure 5 showed that B05, P11 and P18 have comparable outcomes. The most recent scheme (P18), which also features the least amount of classes, was therefore selected to report a DDU PSC event as an illustration of the detection methodology. The lidar time series is presented in Fig. 6a. At the cost of a reduced SNR implied by the 15 min time integration, the short-scale dynamics of the PSC layers are visible. The signal is horizontally smoothed on a 30 min window. The measurements shown in Fig. 6 are obtained on 28 August 2015 from

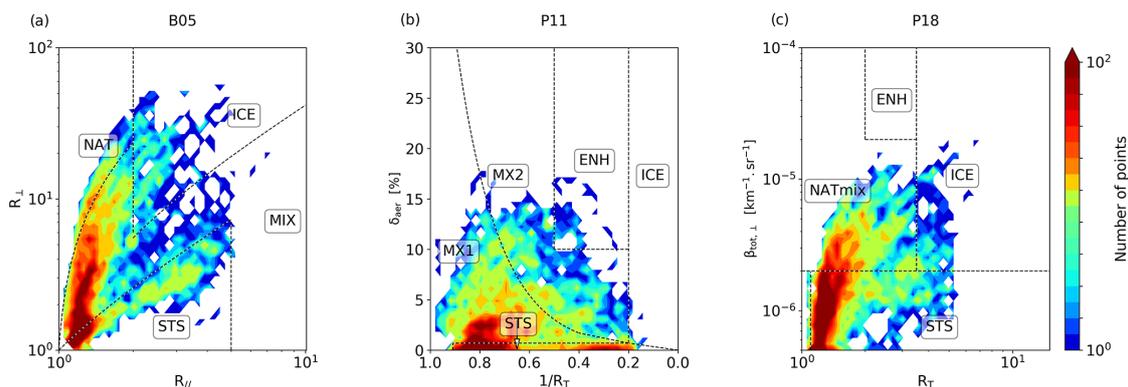


Figure 4. Distribution of the PSC measurements acquired at DDU between 2007 and 2020 based on the three classification schemes considered: B05 (a), P11 (b) and P18 (c). The number of points per bin is colour-coded and each plot is based on a 5×50 bins grid.

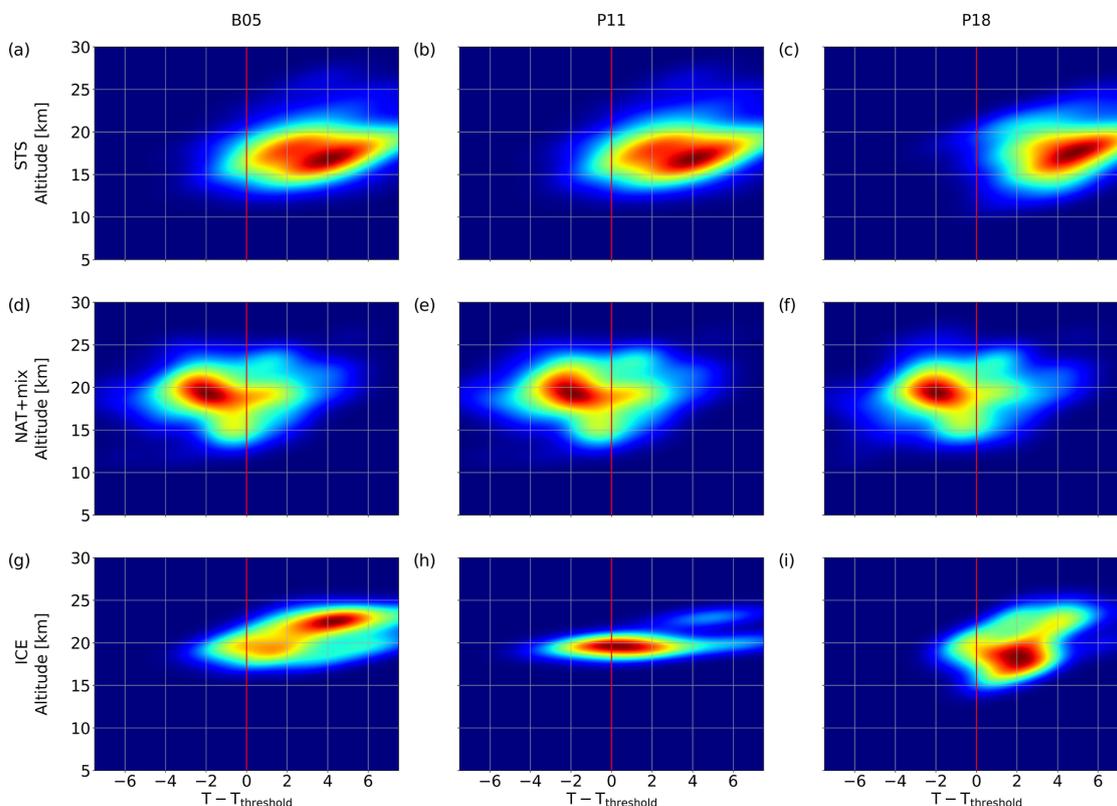


Figure 5. Distribution of PSC detection at DDU from 2007 to 2020 as a function of altitude and temperature relative to the relevant thresholds T_{STS} , T_{NAT} and T_{ICE} . Lines correspond to STS (a–c), NAT + mixtures (d–f) and ICE (g–i). Columns correspond to the classification schemes B05 (a, d, g), P11 (b, e, h) and P18 (c, f, i).

10:05 until 20:20 UTC. As elements of context, we present in Fig. A1 the outputs of a chemistry–transport model available in the institute (REPROBUS coupled to the MIMOSA transport scheme), resolving PSC formation from the thermodynamical equilibrium assumption and a modal size scheme for the microphysics, accounting for temperature tracers of time

elapsed below T_{NAT} and T_{ICE} . References on the transport model can be found in Hauchecorne et al. (2002) and on the chemistry module in Lefèvre et al. (1994). Figure A1 shows PSC flag presence at the 435, 475 and 550 K potential temperature levels computed from ERA5 reanalyses. The model produces PSC presence at the 435 and 475 K levels and no

PSC at the 550 K level above DDU, which is consistent with the lidar measurements.

Figure 6a also highlights the high temporal variability of PSC layers at the DDU latitude. This high variability must be kept in mind as well as the trade-off on the integration time between SNR and information loss caused by the averaging of potential varying atmospheric scenes due to the air masses transport. Figure 6 also underlines the contrast between the reality of a complex shape of the 3D PSC field and the necessary and legitimate stance of recent classification schemes to keep things as simple as possible. PSCs are evolving depending on their stratospheric environment. While PSC particles are constantly growing or shrinking, taking up H₂O or HNO₃ from the gas phase or enriching it, the classification schemes keep up with fixed thresholds as temperature history has not been accounted for. On Fig. 6b, the type identified for the PSCs located at 20 km changes several times from NATmix to ICE. Since this measurement is processed with P18, it implies that R_T has just crossed the $R_{T,ICE}$ threshold. The PSC chemical composition may not have changed, but its optical properties may have shifted it from one class to another.

Figure 6a and b also illustrate the stack of fine PSC layers, it is especially clear between 10:00 and 15:00 UTC. In the beginning of the measurement session, some of the layers at the bottom of the stratosphere are interpreted as STSs while the upper ones are classified as NATmix. Then, starting from noon and until the end of the session, R_T increases and the PSC becomes ice dominated. This evolution is consistent with the ERA5 temperatures shown in Fig. 6c. In the first half of the session the temperature of the domain between 10 and 18 km is slightly above T_{ICE} but then reaches this threshold on a thinner domain in agreement with the lidar PSC detection of Fig. 6a and b which layer becomes thinner as time elapses during the day.

To further check the temperature evolution regarding T_{ICE} , Fig. 7a compares T_{ICE} (sky blue dashed line) to ERA5 temperatures profiles at 11:00, 18:00 and 23:00 UTC (yellow, green and black lines respectively). The ERA5 profile at 23:00 UTC is included in order to be compared to the radiosonde temperature launched at DDU at 23:00 UTC (blue line). The discrepancies between ERA5 and DDU radiosonde temperatures are actually associated with the drift of the radiosonde as its altitude increases. Figure 7b and c show ERA5 $T - T_{ICE}$ fields around DDU at 23:00 UTC at 70 and 100 hPa (approximately 15 and 17 km respectively) together with the trajectory of DDU radiosonde (black and red dots). Red dots show the location of the radiosonde between 14 and 18 km, i.e. the boundaries of the ICE PSC detected at DDU. This one example highlights the recurrent drift of the radiosonde leading to use of reanalyses for climatological purposes. While ERA5 temperature between 14 and 18 km at DDU are compatible with an ICE PSC, the radiosonde tells a different story. Radiosonde drift is closely connected to temperature uncertainties, and we discuss this point in the next

section, as temperature is a critical variable in threshold processes like cloud formation.

4.3 Temperature datasets

Lidar data processing heavily relies on accurate temperature data due to Rayleigh scattering and extinction correction to get the Mie contribution out of the raw signal. PSC characterization is also closely connected to temperature thresholds, as shown in Figs. 6 and 7. In that regard, the choice of temperature dataset should be done with caution. In order to use the most adapted temperature dataset to process our PSC measurements at DDU, we compare several ones in Fig. 8, from reanalysis to satellite observations. Figure 8a shows the distribution of DDU radiosondes locations between 15 and 25 km, i.e. the stratospheric altitude range of most PSC occurrences, from 2010 to 2020 (radiosondes were not equipped with a GPS before 2010). Figure 8b, c and d present the temperature difference between ERA5 (Fig. 8b – $\Delta T_{ERA5-RS}$), NCEP (Fig. 8c – $\Delta T_{NCEP-RS}$) and IASI (Fig. 8d – $\Delta T_{IASI-RS}$) with respect to DDU radiosondes from June to September, from 2007 to 2020. The IASI temperature product provides high spatial resolution and daily temperature profiles included in a narrow box of 0.6° longitude width and 0.3° latitude height centred on DDU from 2008 onwards. The area used to extract IASI temperature profiles is delimited by a red dashed rectangle in Fig. 8a.

Temperature profiles from DDU radiosondes were not retained for this climatological study for two reasons. First, they are launched at DDU every day around 09:00 local time, and the lidar is operated at nighttime, so a discrepancy might arise, especially during summer. Second, as it can be inferred from Fig. 8b, c and d, radiosondes often burst reaching between 15 and 25 km in the wintertime (see Fig. A2 in Appendix) and therefore do not provide the full temperature vertical profile. Figure 8a highlights this important horizontal transport. Figure A2 in the Appendix shows the distribution of the distance to DDU at which radiosondes burst, from 2010 to 2020, in summer and in winter. To illustrate that such horizontal transport can have significant impact on the temperature retrieved by radiosondes as compared to the stratospheric conditions above DDU, Fig. A3 in the Appendix presents six examples of ERA5 temperature fields over the same geographical areas as Fig. 8a. These examples show the variety of spatial temperature patterns experienced around DDU and emphasize that radiosondes should be used with caution as this important horizontal transport is often not taken into account. At least during polar winter, temperature profiles retrieved from radiosondes should not be considered as purely representative of the launch pad location.

We basically consider three temperature datasets, two are reanalyses, ERA5 and NCEP, and the third one is an inversion product out of IASI satellite radiances. Figure 8b, c and d present an intercomparison with radiosondes launched at DDU from June to September, from 2007 to 2020. First,

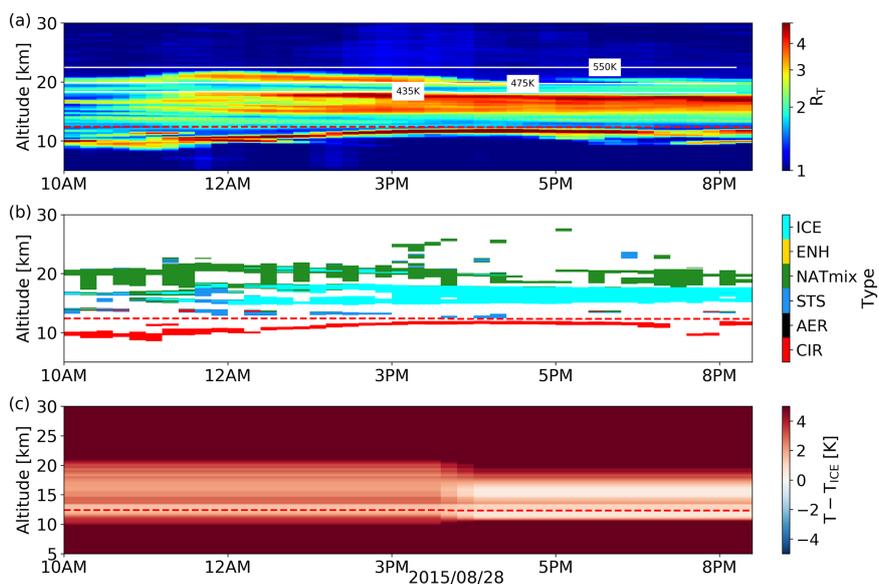


Figure 6. The 532 nm backscatter ratio of lidar measurements obtained at DDU on 28 August 2015 (a). The corresponding PSC types according to P18 classification scheme (b) and ERA5 temperatures at DDU as compared to the ICE formation threshold T_{ICE} , calculated from the MLS H_2O of the day (c). The red dashed line indicates the dynamic tropopause computed from ERA5 data.

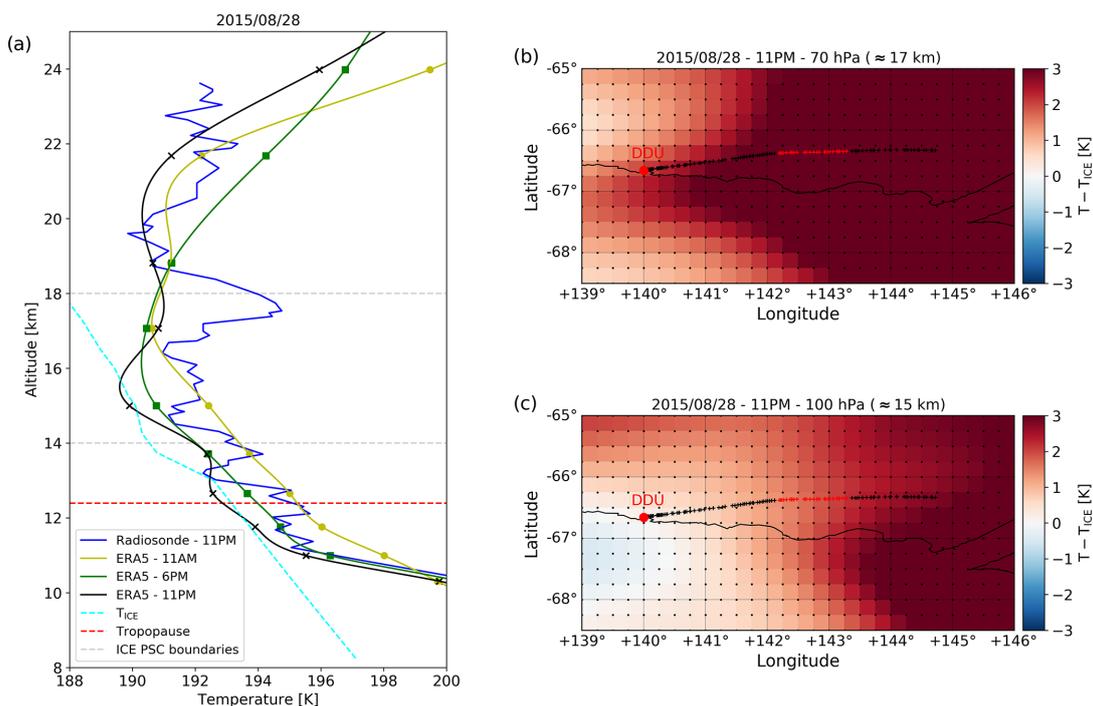


Figure 7. (a) 28 August 2015 DDU temperature profiles from a local radiosonde launched at 23:00 UTC (blue line), ERA5 reanalyses at 12:00 UTC (green line), at 18:00 UTC (yellow line) and at 23:00 UTC (black line). T_{ICE} threshold temperature is indicated by the sky blue dashed line; the red dashed line shows the dynamic tropopause from ERA5. The boundaries of the ICE PSC detected at DDU from approximately 15:00 to 20:00 UTC are shown by grey dashed lines. (b, c) Temperature fields from ERA5 reanalyses on 28 August 2015 at 23:00 UTC respectively at 70 hPa, approx. 17 km, and 100 hPa, approx. 15 km. The trajectory of the radiosonde launched at DDU on 28 August 2015 at 23:00 UTC is shown by black and red dots. Red dots correspond to heights between 14 and 18 km i.e. the boundaries of the ICE PSC detected at DDU.

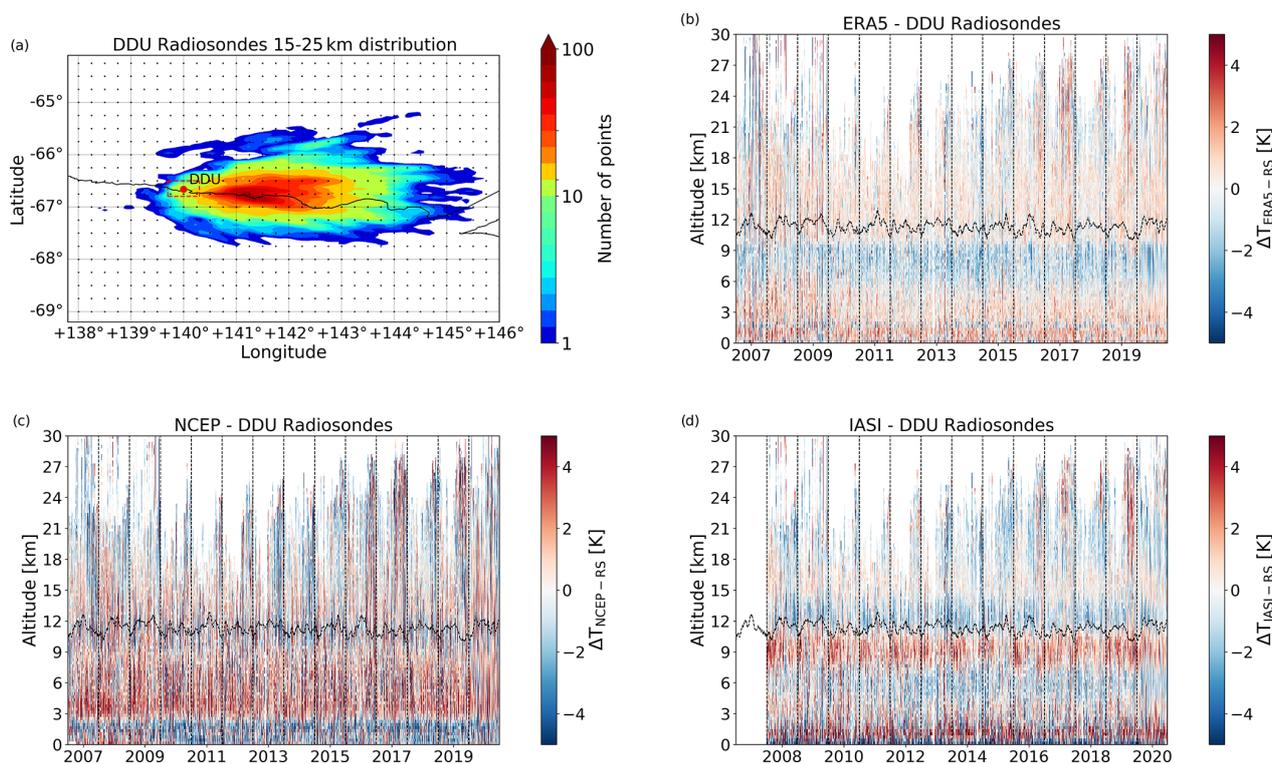


Figure 8. Spatial distribution of radiosonde measurements between 15 and 25 km from June to September from 2010 to 2020 (a). The number of points per bin is colour-coded; the grid size is 100×100 bins. Black dots indicate the ERA5 grid. The red dashed rectangle delimits the area used to extract IASI temperature profiles. Difference between temperature given by ERA5 (b), NCEP (c) and measured by IASI (d) as compared to radiosondes launched at DDU from June to September from 2007 to 2020. The black dashed line indicates the dynamic tropopause based on ERA5.

NCEP is obviously less accurate than ERA5 and IASI, both in the troposphere and in the stratosphere. The difference between ERA5 and IASI seems not to be significant and the comparison with radiosondes exhibits altitude-dependent patterns. For ERA5, $\Delta T_{\text{ERA5-RS}}$ is positive in the stratosphere and negative in the upper troposphere. For IASI, a positive $\Delta T_{\text{IASI-RS}}$ bias is recorded below the tropopause suggesting a difficulty in assessing the tropopause height, or a vertical resolution problem (the IASI dataset is a 11-layer product between 750 and 7 hPa, whereas ERA5 has a finer resolution). To quantify the deviation of ERA5, NCEP and IASI with respect to the radiosondes, the standard deviation of $\Delta T_{\text{ERA5-RS}}$, $\Delta T_{\text{NCEP-RS}}$ and $\Delta T_{\text{IASI-RS}}$ was computed between 15 and 25 km. It reaches 1.0 K for ERA5, 2.0 K for NCEP and 1.1 K for IASI. Considering the above statements, and the finer vertical resolution of the ERA5 temperature product, we consider the use of the ERA5 temperature the most relevant to our study.

4.4 PSC trend estimation

As mentioned in introduction, ground stations are key to the establishment of decadal trends. Operating instruments

at high latitudes for decades remains a technical and logistical challenge, and the focus is put on continuous monitoring. Bad weather or thick tropospheric cloud cover hinders the operation of the lidar. Therefore, comparing the raw number of PSC days per year would be strongly biased by the number of days on which the lidar is effectively operated each year. The statistics of operations is the critical point in establishing a trend here, see Fig. 1. We choose to complement the statistics of lidar measurements with a temperature proxy, considering that PSCs form when temperature drops below T_{NAT} . For qualitative and counting purposes, this assumption is fully valid and will be illustrated hereafter. ERA5, NCEP and IASI temperatures are used to compile stratospheric temperature above DDU. Using these temperatures, a number of potential PSC days is computed, i.e. the number of days where PSCs could occur based only on temperature. The number of PSC days per year is the variable considered in order to circumvent the challenging issue of delimiting PSCs both in time and space.

Mainly due to chemical kinetic concerns, PSCs generally form a few degrees below T_{NAT} (Dye et al., 1992). Using the condition $T - T_{\text{NAT}} < 0$ to state if a day is a potential PSC day

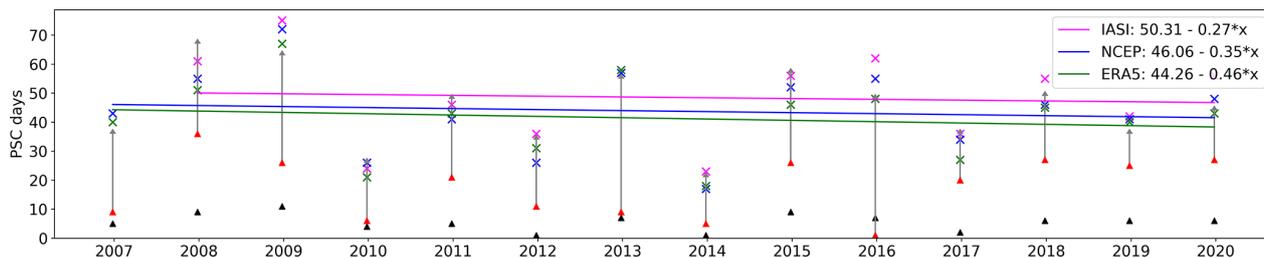


Figure 9. PSC days per year at DDU from 2007 to 2020 featuring PSC detection with the DDU lidar in red triangles and with CALIOP in black triangles. Potential PSC days per year estimated by ERA5, NCEP and IASI based on the lidar measurements are shown with green, blue and fuchsia crosses respectively. Green, blue and fuchsia lines represent the corresponding trends. Grey arrows indicate the number of days per year where the $T - T_{\text{NAT}} < -1$ K criterion was satisfied and the DDU lidar was not operated.

could then lead to an overestimation of the number of PSCs. In order to refine the criterion, we computed for each year the number of days satisfying the condition $T - T_{\text{NAT}} < \Delta T$ per year, with ΔT ranging from 0 to -10 K on the days lidar measurements were available. The results obtained with the different ΔT values were compared with the number of PSC days detected by the lidar. The result lead to a similar value for ERA5, NCEP and IASI of $\Delta T = -1$ K. Figure 9 shows the 2007–2020 PSC days per year built on ERA5 (green line), NCEP (blue line) and IASI (fuchsia line) based on this criteria, as well as the number of PSC days detected by the lidar with red triangles. The grey arrows indicate the number of days per year satisfying the $T - T_{\text{NAT}} < -1$ K criteria with no coincident lidar measurements. The T_{NAT} values have been computed based on the daily MLS H_2O and HNO_3 measurements at DDU.

The number of PSCs detected by the lidar in Fig. 9 is consistently and logically below the one estimated by the temperature datasets. The three datasets were considered for the trend calculation to show that despite the discrepancies they all indicate an approximately similar trend. From Fig. 9, we note a decreasing trend of -4.6 PSC days per decade that could not have been inferred from the lidar measurements alone. The 14-year trend remains significant when its sensitivity is tested regarding the ΔT criterion or the impact of any single year. Given the temperature-based criterion used, this trend means that the temperature of the stratosphere above DDU is experiencing an opposite trend, as PSC occurrences directly correlate to temperature changes.

Temperature trends computed with IASI over the 2008–2020 period show significant warming above Dumont d’Urville (0.1 K yr^{-1} between 200 and 70 hPa, adapted from Bouillon et al. (2022), shown in Fig. A4). ERA5 trends over the same period show very similar results. As mentioned in Tritscher et al. (2021), the acceleration of the Brewer–Dobson circulation linked to climate change counteracts the expected cooling from greenhouse gases at high latitudes. The recovery of the ozone hole also advocates for a rise of polar stratospheric temperatures (WMO, 2018). Despite Bouillon et al. (2022) indicating a warming trend that is not

specific to DDU, it should be noted that a trend in the size or location of the polar vortex could also contribute to the temperature trend observed at DDU, it is however not the scope of the present study.

If this 14-year trend is negative, it is not the case for longer time spans: using the same method over the period 1992–2020, we conclude on no significant trend. This is consistent with recent studies concluding on no significant trend of PSC occurrences on the continental scale using longer time periods (Tritscher et al., 2021). It is worth noting that David et al. (2010) also established a local temperature trend using 50 years of balloon radiosoundings above DDU, concluding on no significant temperature trend during winter. David et al. (2010) also concluded on a positive but statistically not significant PSC occurrences frequency trend over the period 1989–2008. Similarly, trends computed with ERA5 over 1990–2020 show small or insignificant warming (Bouillon, 2021), which is consistent with the results of others studies where trends were computed on a longer period (Randel et al., 2016; Maycock et al., 2018). This might suggest that the ozone hole recovery has been strengthening in the past decade.

Discussing PSC estimation by models, Tritscher et al. (2021) stated that the PSC volumes derived from ERA-Interim using the $T < T_{\text{NAT}}$ criteria are about 50 % overestimated as compared to the satellite PSC measurements. Such an overestimation may be due to reanalysis uncertainties especially in the calculation of T_{NAT} . Mostly, this PSC volume evaluation assumes that PSC layers entirely fill the available stratospheric volume satisfying $T < T_{\text{NAT}}$. This hypothesis does not seem in agreement with our observations at DDU. To check this above DDU, for each day with a PSC detection, we calculated the stratospheric range satisfying the condition $T - T_{\text{NAT}}$. T_{NAT} was calculated with the daily MLS H_2O and HNO_3 measurements. Let us call this range H_{NAT} , expressed in km. We also calculated the geometrical thickness of the PSC detected, called H_{PSC} . Then, we computed the difference $H_{\text{NAT}} - H_{\text{PSC}}$: it represents the stratospheric range satisfying $T - T_{\text{NAT}}$ unoccupied by PSC layers. The distribution of this difference for all PSC detections at DDU from 2007

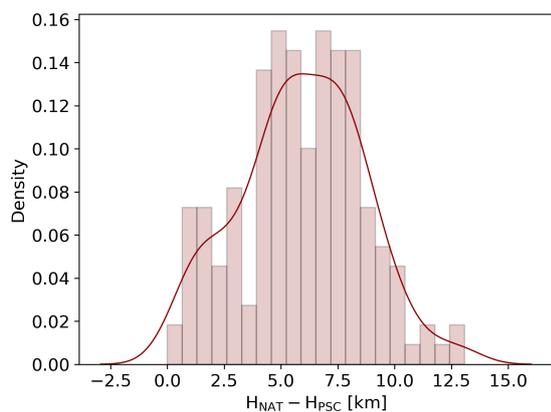


Figure 10. Distribution of the thickness of the stratospheric domain satisfying $T < T_{\text{NAT}}$ unoccupied by PSC layers, in km, on days when a PSC is detected at DDU.

to 2020 is plotted in Fig. 10. Figure 10 tends to show that the stratospheric domain satisfying $T < T_{\text{NAT}}$ is larger than the actual range filled by PSC layers. Given the fact that ERA5 slightly overestimates stratospheric temperature at DDU according to Fig. 8b, the discrepancy between PSC thickness and the stratospheric domain satisfying $T < T_{\text{NAT}}$ could even be underestimated.

5 Conclusions

The stratospheric DDU Rayleigh/Mie/Raman lidar is one of the few instruments monitoring stratospheric aerosol and cloud activity in Antarctica for decades. This study presents PSC measurements acquired from 2007 to 2020. The high vertical and spectral characterization capabilities of lidar instruments remain the best suited to characterize any given particle population, especially at stratospheric altitudes. Optical properties overall shape PSC classifications, which in turn drive the parameterizations of PSCs in models. Over time, many PSC schemes were published using different species, mixtures, optical variables and separation thresholds. In this paper we analyse DDU PSC measurements using three major schemes referred to as B05, P11 and P18; the first relies on ground-based measurements and the other two on CALIOP spaceborne measurements. Laying our measurements on these schemes, a good mutual agreement between all three is established. ICE cloud ratios still vary from one scheme to another, but these differences are directly explained by the design of the classifications. DDU measurements are also compared to a PSC types distribution based on CALIOP PSC measurements around DDU from 2007 to 2020. Ground-based and spaceborne measurements agree relatively well on the types distribution, showing significant disagreement only for the ICE and ENH types, but the relatively low number of CALIOP PSC observations at DDU location explains most of the variability. Connected to this,

an established correlation between ICE cloud formation and tropospheric cloud cover should also explain the variability, as it prevents our instrument from operating. The spaceborne geometry always has direct access to the stratosphere without any significant particle extinction. Investigating this correlation is an interesting perspective of this work. Correlating PSC formation temperature to the three chemical classes, ICE clouds are observed at a higher altitude than STS and NAT clouds.

From typical lidar time series, we highlight the small-scale features of PSC layers as well as their temporal variability both in vertical extent and optical properties, discussing time integration influence (both from a ground and space geometry) when using thresholds to characterize cloud types. Smaller local datasets are able to support class definition by refining mesoscale observed behaviours. We also extensively consider the sensitivity of temperature datasets as small-scale proxies for PSC formation thresholds. Overall, we emphasize how the local variability of the measurements acquired at the station closely relates to the dynamics of the vortex and prevalence of horizontal transport at stratospheric altitudes. We compare ERA5 and NCEP reanalyses to a IASI-derived temperature product and to local radiosondes. Related to the coastal location of the station, a significant spatial drift of the sondes during their ascent up to the stratosphere leads us to use temperature reanalyses in lidar data processing to ensure consistency. ERA5 proves to be the most convenient dataset to use locally, showing a satisfying agreement with DDU radiosondes from 2007 to 2020. In the near future, the IASI product should become an interesting option, especially for high latitude sites: the accuracy seems to be the same as ERA5, except in the upper troposphere.

A temperature proxy statistically complements DDU lidar PSC measurement days and we built a 14-year trend of number of PSC days per year. A significant slightly negative (-4.6 PSC days per decade) trend is found between 2007 and 2020 and relates to an opposite trend in term of stratospheric temperatures for southern high latitudes which was also reported in a recent study (Bouillon et al., 2022).

PSC volume is often estimated in models as the stratospheric volume satisfying $T < T_{\text{NAT}}$, with acknowledged overestimation in derived volumes up to 50% (Tritscher et al., 2021). DDU lidar measurements show that the PSC detected are often significantly thinner than the stratospheric domain satisfying $T < T_{\text{NAT}}$. This should have an impact on chemical efficiencies of chemical compound conversion rates involved in stratospheric ozone chemistry, but it is beyond the scope of our paper.

Finally, DDU offers a privileged access to air mass entries into the vortex, which has been studied recently after the 2020 Australian wildfire event above DDU (Tencé et al., 2022). The global impact of volcanic or biomass burning aerosols through long-range transport now attracts more scientific attention, and these events feature, especially after months of transport, optical properties that overlap the one

of some PSC types, mainly STS. Speciation between stratospheric sulfate, carbonaceous aerosols and STS PSC type requires extensive measurement capabilities in monitoring stations. Delving into any potential interplay between PSC and aerosol layers also demands consolidated PSC classification schemes.

Appendix A

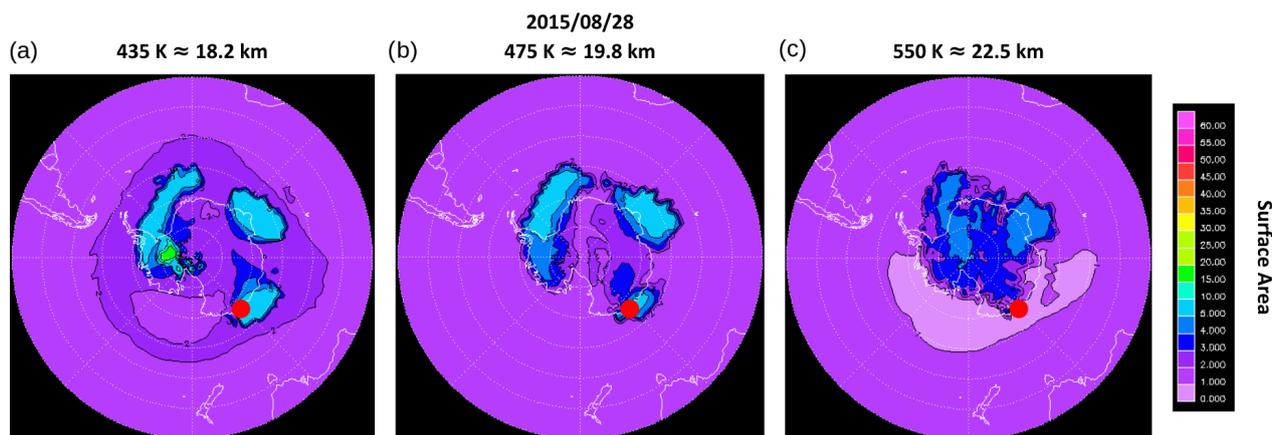


Figure A1. PSC surface area ($\mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$) maps from the Reprobus model for 28 August 2015 at 435 K (a), 475 K (b) and 550 K (c). DDU location is indicated by the red dots.

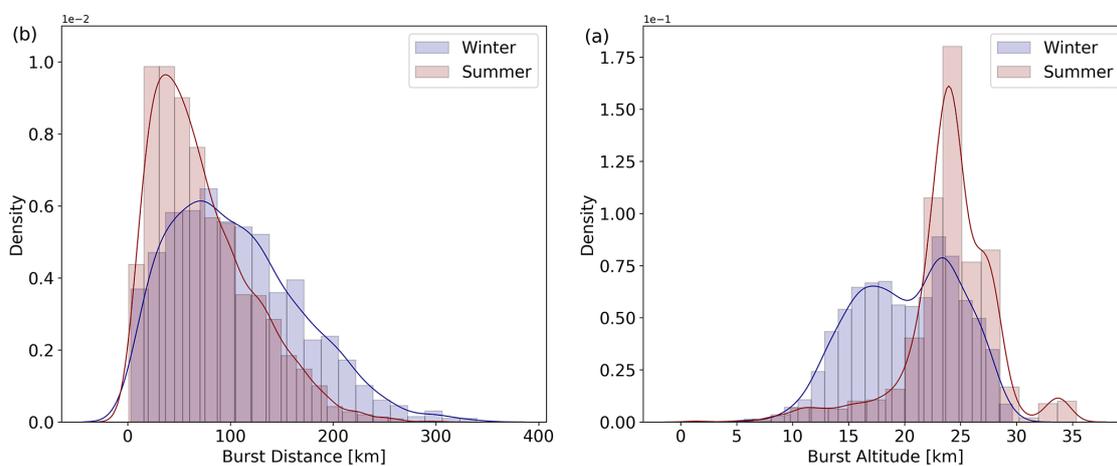


Figure A2. (a) Distribution of the distance between DDU and the burst location of DDU radiosondes in summer (red) and winter (blue) from 2010 to 2020. (b) Distribution of the burst height in summer (red) and winter (blue) from 2010 to 2020. Winter is defined as the period from June to September included, and Summer is the rest of the year.

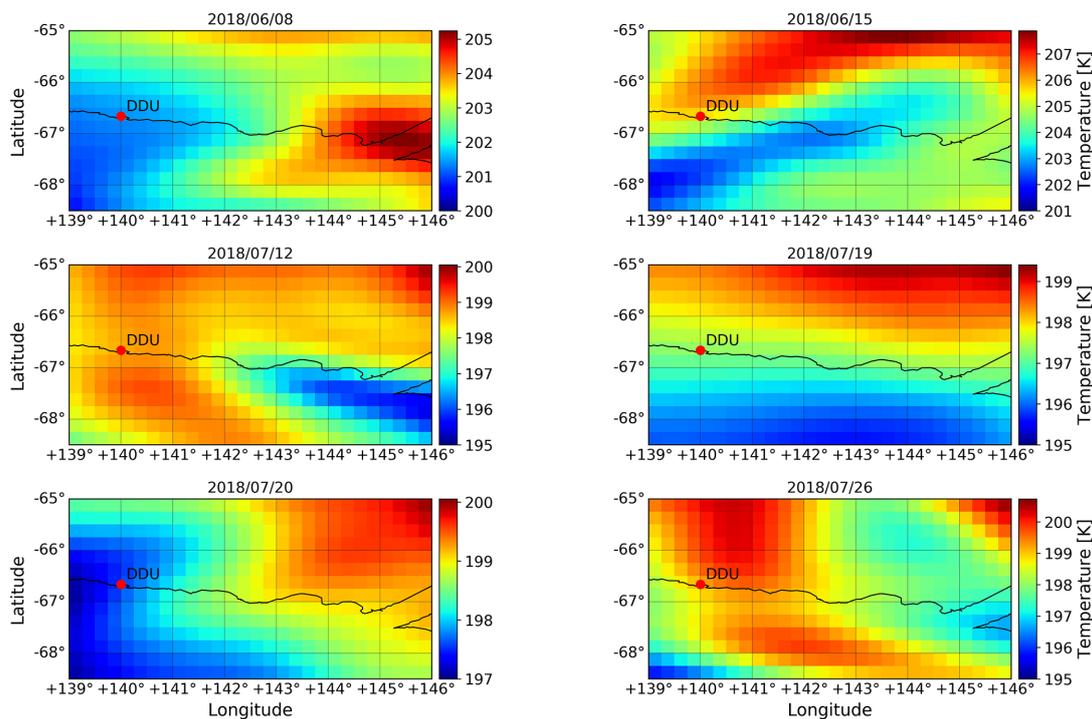


Figure A3. ERA5 reanalyses temperature fields at 100 hPa for the domain corresponding to the radiosondes drift shown in Fig. 8.

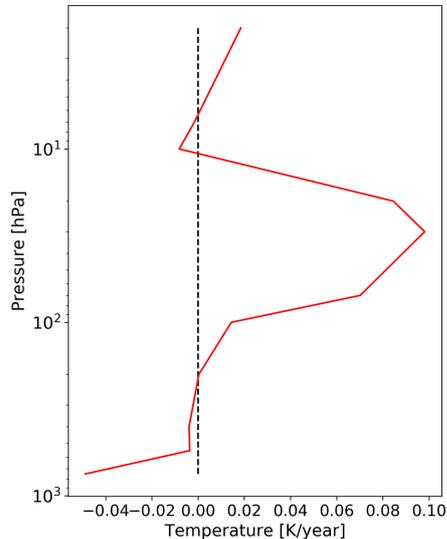


Figure A4. IASI temperature trend at DDU from 2008 to 2020. Adapted from Bouillon et al. (2022).

Data availability. The Dumont d'Urville lidar instrument is part of the NDACC international network and data are publicly available online at the NDACC/NOAA data archive (<https://www-air.larc.nasa.gov/missions/ndacc/>, last access: 29 December 2022; Jumelet, 2022). ERA5 reanalysis data are available on the Copernicus Climate Data Store at <https://doi.org/10.24381/cds.bd0915c6> (Hersbach et al., 2018). NCEP/NCAR reanalysis data are available at <https://www-air.larc.nasa.gov/missions/ndacc/data.html?NCEP=ncep-list> (last access: 11 January 2023; NCEP/NCAR, 2023; Kalnay et al., 1996; Jumelet, 2022).

Author contributions. FT and JJ designed the methodology and the core of the paper and processed the lidar measurements. MB and SS produced and provided the IASI temperature product. DC computed the ERA5 temperature product for DDU. SB, PK and AS supervised the project and provided expertise.

Competing interests. The contact author has declared that none of the authors has any competing interests.

Disclaimer. Publisher's note: Copernicus Publications remains neutral with regard to jurisdictional claims in published maps and institutional affiliations.

Acknowledgements. The authors would like to thank the French Polar Institute (IPEV, Institut polaire français Paul-Émile Victor) which supports the science programme 209 operations on the Dumont d'Urville station, as well as the different operators of the DDU lidar who conduct measurements all year long in Antarctica and are essential to this work.

Financial support. This research has been supported by the French Polar Institute IPEV (Institut polaire français Paul-Émile Victor) science programme 209, the EECLAT project (CNES-INSU), and the NDACC international network (lidar instrument).

Review statement. This paper was edited by Matthias Tesche and reviewed by three anonymous referees.

References

- Abbatt, J. P. D. and Molina, M. J.: The heterogeneous reaction of HOCl + HCl → Cl₂ + H₂O on ice and nitric acid trihydrate: Reaction probabilities and stratospheric implications, *Geophys. Res. Lett.*, 19, 461–464, <https://doi.org/10.1029/92GL00373>, 1992.
- Achtart, P. and Tesche, M.: Assessing lidar-based classification schemes for polar stratospheric clouds based on 16 years of measurements at Esrange, Sweden, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 119, 1386–1405, <https://doi.org/10.1002/2013JD020355>, 2014.
- Achtart, P., Karlsson Andersson, M., Khosrawi, F., and Gumbel, J.: On the linkage between tropospheric and Polar Stratospheric clouds in the Arctic as observed by space-borne lidar, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 3791–3798, <https://doi.org/10.5194/acp-12-3791-2012>, 2012.
- Adhikari, L., Wang, Z., and Liu, D.: Microphysical properties of Antarctic polar stratospheric clouds and their dependence on tropospheric cloud systems, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 115, D00H18, <https://doi.org/10.1029/2009JD012125>, 2010.
- Adriani, A., Massoli, P., Di Donfrancesco, G., Cairo, F., Moriconi, M. L., and Snels, M.: Climatology of polar stratospheric clouds based on lidar observations from 1993 to 2001 over McMurdo Station, Antarctica, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 109, D24211, <https://doi.org/10.1029/2004JD004800>, 2004.
- Ansmann, A., Ohneiser, K., Chudnovsky, A., Knopf, D. A., Elooranta, E. W., Villanueva, D., Seifert, P., Radenz, M., Barja, B., Zamorano, F., Jimenez, C., Engelmann, R., Baars, H., Griesche, H., Hofer, J., Althausen, D., and Wandinger, U.: Ozone depletion in the Arctic and Antarctic stratosphere induced by wildfire smoke, *Atmos. Chem. Phys.*, 22, 11701–11726, <https://doi.org/10.5194/acp-22-11701-2022>, 2022.
- Behrendt, A. and Nakamura, T.: Calculation of the calibration constant of polarization lidar and its dependency on atmospheric temperature, *Opt. Express*, 10, 805–817, <https://doi.org/10.1364/OE.10.000805>, 2002.
- Blum, U., Fricke, K. H., Müller, K. P., Siebert, J., and Baumgarten, G.: Long-term lidar observations of polar stratospheric clouds at Esrange in northern Sweden, *Tellus B*, 57, 412–422, <https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2005.00161.x>, 2005.
- Bouillon, M.: Températures atmosphériques homogènes dérivées des observations satellitaires IASI: restitution, variations spatio-temporelles et événements extrêmes, PhD thesis, Sorbonne Université, <https://theses.hal.science/tel-03688289> (last access: 29 December 2022), 2021.
- Bouillon, M., Safieddine, S., Whitburn, S., Clarisse, L., Aires, F., Pellet, V., Lezeaux, O., Scott, N. A., Doutriaux-Boucher, M., and Clerbaux, C.: Time evolution of temperature profiles retrieved from 13 years of infrared atmospheric sounding interferometer (IASI) data using an artificial neural network, *Atmos. Meas. Tech.*, 15, 1779–1793, <https://doi.org/10.5194/amt-15-1779-2022>, 2022.
- Browell, E. V., Butler, C. F., Ismail, S., Robinette, P. A., Carter, A. F., Higdon, N. S., Toon, O. B., Schoeberl, M. R., and Tuck, A. F.: Airborne lidar observations in the wintertime Arctic stratosphere: Polar stratospheric clouds, *Geophys. Res. Lett.*, 17, 385–388, <https://doi.org/10.1029/GL017i004p00385>, 1990.
- Cairo, F., Adriani, A., Viterbini, M., Di Donfrancesco, G., Mitev, V., Matthey, R., Bastiano, M., Redaelli, G., Dragani, R., Ferretti, R., Rizi, V., Paolucci, T., Bernardini, L., Cacciani, M., Pace, G., and Fiocco, G.: Polar stratospheric clouds observed during the Airborne Polar Experiment – Geophysica Aircraft in Antarctica (APE-GAIA) campaign, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 109, D07204, <https://doi.org/10.1029/2003JD003930>, 2004.
- Carlsaw, K. S., Peter, T., and Clegg, S. L.: Modeling the composition of liquid stratospheric aerosols, *Rev. Geophys.*, 35, 125–154, <https://doi.org/10.1029/97RG00078>, 1997.
- Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Hurtmans, D., Pommier, M., Razavi, A., Turquety, S., Wespes, C., and Coheur, P.-F.: Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/MetOp sounder, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6041–6054, <https://doi.org/10.5194/acp-9-6041-2009>, 2009.
- David, C., Keckhut, P., Armetta, A., Jumelet, J., Snels, M., Marchand, M., and Bekki, S.: Radiosonde stratospheric temperatures at Dumont d'Urville (Antarctica): trends and link with polar stratospheric clouds, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 3813–3825, <https://doi.org/10.5194/acp-10-3813-2010>, 2010.
- David, C., Haeefe, A., Keckhut, P., Marchand, M., Jumelet, J., Leblanc, T., Cenac, C., Laqui, C., Porteneuve, J., Haefelin, M., Courcoux, Y., Snels, M., Viterbini, M., and Quatrevalet, M.: Evaluation of stratospheric ozone, temperature, and aerosol profiles from the LOANA lidar in Antarctica, *Pol. Sci.*, 6, 209–225, <https://doi.org/10.1016/j.polar.2012.07.001>, 2012.
- Dye, J. E., Baumgardner, D., Gandrud, B. W., Kawa, S. R., Kelly, K. K., Loewenstein, M., Ferry, G. V., Chan, K. R., and Gary, B. L.: Particle size distributions in Arctic polar stratospheric clouds, growth and freezing of sulfuric acid droplets, and implications for cloud formation, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 97, 8015–8034, <https://doi.org/10.1029/91JD02740>, 1992.
- Ebert, M., Weigel, R., Kandler, K., Günther, G., Molleker, S., Groöß, J.-U., Vogel, B., Weinbruch, S., and Borrmann, S.: Chemical analysis of refractory stratospheric aerosol particles collected within the arctic vortex and inside polar stratospheric clouds, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 8405–8421, <https://doi.org/10.5194/acp-16-8405-2016>, 2016.
- Eckermann, S. D., Wu, D. L., Doyle, J. D., Burris, J. F., McGee, T. J., Hostetler, C. A., Coy, L., Lawrence, B. N., Stephens, A., McCormack, J. P., and Hogan, T. F.: Imaging gravity waves in lower

- stratospheric AMSU-A radiances, Part 2: Validation case study, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3343–3362, <https://doi.org/10.5194/acp-6-3343-2006>, 2006.
- Engel, I., Luo, B. P., Pitts, M. C., Poole, L. R., Hoyle, C. R., Grooß, J.-U., Dörnbrack, A., and Peter, T.: Heterogeneous formation of polar stratospheric clouds – Part 2: Nucleation of ice on synoptic scales, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 10769–10785, <https://doi.org/10.5194/acp-13-10769-2013>, 2013.
- Fernald, F. G.: Analysis of atmospheric lidar observations: some comments, *Appl. Optics*, 23, 652–653, <https://doi.org/10.1364/AO.23.000652>, 1984.
- Hanson, D. and Mauersberger, K.: Laboratory studies of the nitric acid trihydrate: Implications for the south polar stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 15, 855–858, <https://doi.org/10.1029/GL015i008p00855>, 1988.
- Hanson, D. R. and Ravishankara, A. R.: Reaction of ClONO₂ with HCl on NAT, NAD, and frozen sulfuric acid and hydrolysis of N₂O₅ and ClONO₂ on frozen sulfuric acid, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 98, 22931–22936, <https://doi.org/10.1029/93JD01929>, 1993.
- Hauchecorne, A., Godin-Beekmann, S., Marchand, M., Heese, B., and Souprayen, C.: Quantification of the transport of chemical constituents from the polar vortex to midlatitudes in the lower stratosphere using the high-resolution advection model MIMOSA and effective diffusivity, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 107, SOL 32-1–SOL 32-13, <https://doi.org/10.1029/2001JD000491>, 2002.
- Hersbach, H., Bell, B., Berrisford, P., Biavati, G., Horányi, A., Muñoz Sabater, J., Nicolas, J., Peubey, C., Radu, R., Rozum, I., Schepers, D., Simmons, A., Soci, C., Dee, D., and Thépaut, J.-N.: ERA5 hourly data on pressure levels from 1959 to present, Copernicus Climate Change Service (C3S) Climate Data Store (CDS) [data set], <https://doi.org/10.24381/cds.bd0915c6>, 2018.
- Hersbach, H., Bell, B., Berrisford, P., Hirahara, S., Horányi, A., Muñoz-Sabater, J., Nicolas, J., Peubey, C., Radu, R., Schepers, D., Simmons, A., Soci, C., Abdalla, S., Abellan, X., Balsamo, G., Bechtold, P., Biavati, G., Bidlot, J., Bonavita, M., De Chiara, G., Dahlgren, P., Dee, D., Diamantakis, M., Dragani, R., Flemming, J., Forbes, R., Fuentes, M., Geer, A., Haimberger, L., Healy, S., Hogan, R. J., Hólm, E., Janisková, M., Keeley, S., Laloyaux, P., Lopez, P., Lupu, C., Radnoti, G., de Rosnay, P., Rozum, I., Vamborg, F., Villaume, S., and Thépaut, J.-N.: The ERA5 global reanalysis, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 146, 1999–2049, <https://doi.org/10.1002/qj.3803>, 2020.
- Höpfner, M., Larsen, N., Spang, R., Luo, B. P., Ma, J., Svendsen, S. H., Eckermann, S. D., Knudsen, B., Massoli, P., Cairo, F., Stiller, G., v. Clarmann, T., and Fischer, H.: MIPAS detects Antarctic stratospheric belt of NAT PSCs caused by mountain waves, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1221–1230, <https://doi.org/10.5194/acp-6-1221-2006>, 2006.
- Hostetler, C. A., Liu, Z., Reagan, J., Vaughan, M., Winker, D., Osborn, M., Hunt, W. H., Powell, K. A., and Trepte, C.: CALIOP Algorithm Theoretical Basis Document – Part 1: Calibration and Level 1 Data Products, PC-SCI-201, NASA Langley Research Center, Hampton, VA, https://www-calipso.larc.nasa.gov/resources/project_documentation.php (last access: 29 December 2022), 2006.
- James, A. D., Brooke, J. S. A., Mangan, T. P., Whale, T. F., Plane, J. M. C., and Murray, B. J.: Nucleation of nitric acid hydrates in polar stratospheric clouds by meteoric material, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 4519–4531, <https://doi.org/10.5194/acp-18-4519-2018>, 2018.
- Jumelet, J.: Aerosol/cloud stratospheric lidar Dumont d’Urville – 532nmSR/depolarization ratio, NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change) [data set], <https://www-air.larc.nasa.gov/missions/ndacc/>, last access: 29 December 2022.
- Kalnay, E., Kanamitsu, M., Kistler, R., Collins, W., Deaven, D., Gandin, L., Iredell, M., Saha, S., White, G., Woollen, J., Zhu, Y., Chelliah, M., Ebisuzaki, W., Higgins, W., Janowiak, J., Mo, K. C., Ropelewski, C., Wang, J., Leetmaa, A., Reynolds, R., Jenne, R., and Joseph, D.: The NCEP/NCAR 40-Year Reanalysis Project, *B. Am. Meteorol. Soc.*, 77, 437–472, [https://doi.org/10.1175/1520-0477\(1996\)077<0437:TNYRP>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0477(1996)077<0437:TNYRP>2.0.CO;2), 1996.
- Klett, J. D.: Stable analytical inversion solution for processing lidar returns, *Appl. Optics*, 20, 211–220, <https://doi.org/10.1364/AO.20.000211>, 1981.
- Klett, J. D.: Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios, *Appl. Optics*, 24, 1638–1643, <https://doi.org/10.1364/AO.24.001638>, 1985.
- Koop, T., Biermann, U. M., Raber, W., Luo, B. P., Crutzen, P. J., and Peter, T.: Do stratospheric aerosol droplets freeze above the ice frost point?, *Geophys. Res. Lett.*, 22, 917–920, <https://doi.org/10.1029/95GL00814>, 1995.
- Koop, T., Carslaw, K. S., and Peter, T.: Thermodynamic stability and phase transitions of PSC particles, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 2199–2202, <https://doi.org/10.1029/97GL02148>, 1997.
- Koop, T., Luo, B., Tsias, A., and Peter, T.: Water activity as the determinant for homogeneous ice nucleation in aqueous solutions, *Nature*, 406, 611–614, <https://doi.org/10.1038/35020537>, 2000.
- Larsen, N.: Polar stratospheric clouds: Microphysical and optical models, Danish Meteorological Institute, https://www.researchgate.net/profile/Niels-Larsen-6/publication/268441459_Polar_Stratospheric_Clouds_Microphysical_and_optical_models/links/5513f0750cf23203199ccbc3/Polar-Stratospheric-Clouds-Microphysical-and-optical-models.pdf (last access: 29 December 2022), 2000.
- Lefèvre, F., Brasseur, G. P., Folkins, I., Smith, A. K., and Simon, P.: Chemistry of the 1991–1992 stratospheric winter: Three-dimensional model simulations, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 99, 8183–8195, <https://doi.org/10.1029/93JD03476>, 1994.
- Liu, Z., Hunt, W., Vaughan, M., Hostetler, C., McGill, M., Powell, K., Winker, D., and Hu, Y.: Estimating random errors due to shot noise in backscatter lidar observations, *Appl. Optics*, 45, 4437–4447, <https://doi.org/10.1364/AO.45.004437>, 2006.
- Massoli, P., Maturilli, M., and Neuber, R.: Climatology of Arctic polar stratospheric clouds as measured by lidar in Ny-Ålesund, Spitsbergen (79° N, 12° E), *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 111, D09206, <https://doi.org/10.1029/2005JD005840>, 2006.
- Maycock, A. C., Randel, W. J., Steiner, A. K., Karpechko, A. Y., Christy, J., Saunders, R., Thompson, D. W. J., Zou, C.-Z., Chrysanthou, A., Luke Abraham, N., Akiyoshi, H., Archibald, A. T., Butchart, N., Chipperfield, M., Dameris, M., Deushi, M., Dhomse, S., Di Genova, G., Jöckel, P., Kinnison, D. E., Kirner, O., Ladstätter, F., Michou, M., Morgenstern, O., O’Connor, F., Oman, L., Pitari, G., Plummer, D. A., Revell, L. E., Rozanov, E., Stenke, A., Visioni, D., Yamashita,

- Y., and Zeng, G.: Revisiting the Mystery of Recent Stratospheric Temperature Trends, *Geophys. Res. Lett.*, 45, 9919–9933, <https://doi.org/10.1029/2018GL078035>, 2018.
- NCEP/NCAR: NCEP temperature and height profiles, NDACC [data set], <https://www-air.larc.nasa.gov/missions/ndacc/data.html?NCEP=ncep-list>, last access: 11 January 2023.
- Noel, V. and Pitts, M.: Gravity wave events from mesoscale simulations, compared to polar stratospheric clouds observed from spaceborne lidar over the Antarctic Peninsula, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 117, D11207, <https://doi.org/10.1029/2011JD017318>, 2012.
- Parzen, E.: On Estimation of a Probability Density Function and Mode, *Ann. Math. Stat.*, 33, 1065–1076, <https://doi.org/10.1214/aoms/1177704472>, 1962.
- Pitts, M. C., Poole, L. R., and Thomason, L. W.: CALIPSO polar stratospheric cloud observations: second-generation detection algorithm and composition discrimination, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 7577–7589, <https://doi.org/10.5194/acp-9-7577-2009>, 2009.
- Pitts, M. C., Poole, L. R., Dörnbrack, A., and Thomason, L. W.: The 2009–2010 Arctic polar stratospheric cloud season: a CALIPSO perspective, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 2161–2177, <https://doi.org/10.5194/acp-11-2161-2011>, 2011.
- Pitts, M. C., Poole, L. R., Lambert, A., and Thomason, L. W.: An assessment of CALIOP polar stratospheric cloud composition classification, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 2975–2988, <https://doi.org/10.5194/acp-13-2975-2013>, 2013.
- Pitts, M. C., Poole, L. R., and Gonzalez, R.: Polar stratospheric cloud climatology based on CALIPSO spaceborne lidar measurements from 2006 to 2017, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 10881–10913, <https://doi.org/10.5194/acp-18-10881-2018>, 2018.
- Poole, L. R. and McCormick, M. P.: Airborne lidar observations of Arctic polar stratospheric clouds: Indications of two distinct growth stages, *Geophys. Res. Lett.*, 15, 21–23, <https://doi.org/10.1029/GL015i001p00021>, 1988.
- Randel, W. J., Smith, A. K., Wu, F., Zou, C.-Z., and Qian, H.: Stratospheric Temperature Trends over 1979–2015 Derived from Combined SSU, MLS, and SABER Satellite Observations, *J. Climate*, 29, 4843–4859, <https://doi.org/10.1175/JCLI-D-15-0629.1>, 2016.
- Rieger, L. A., Randel, W. J., Bourassa, A. E., and Solomon, S.: Stratospheric Temperature and Ozone Anomalies Associated With the 2020 Australian New Year Fires, *Geophys. Res. Lett.*, 48, e2021GL095898, <https://doi.org/10.1029/2021GL095898>, 2021.
- Rosenblatt, M.: Remarks on Some Nonparametric Estimates of a Density Function, *Ann. Math. Stat.*, 27, 832–837, <https://doi.org/10.1214/aoms/1177728190>, 1956.
- Santacesaria, V., MacKenzie, A. R., and Stefanutti, L.: A climatological study of polar stratospheric clouds (1989–1997) from LIDAR measurements over Dumont d’Urville (Antarctica), *Tellus B*, 53, 306–321, <https://doi.org/10.1034/j.1600-0889.2001.01155.x>, 2001.
- Snels, M., Scoccione, A., Di Liberto, L., Colao, F., Pitts, M., Poole, L., Deshler, T., Cairo, F., Cagnazzo, C., and Fierli, F.: Comparison of Antarctic polar stratospheric cloud observations by ground-based and space-borne lidar and relevance for chemistry–climate models, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 955–972, <https://doi.org/10.5194/acp-19-955-2019>, 2019.
- Snels, M., Colao, F., Cairo, F., Shuli, I., Scoccione, A., De Muro, M., Pitts, M., Poole, L., and Di Liberto, L.: Quasi-coincident observations of polar stratospheric clouds by ground-based lidar and CALIOP at Concordia (Dome C, Antarctica) from 2014 to 2018, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 2165–2178, <https://doi.org/10.5194/acp-21-2165-2021>, 2021.
- Solomon, S.: Stratospheric ozone depletion: A review of concepts and history, *Rev. Geophys.*, 37, 275–316, <https://doi.org/10.1029/1999RG900008>, 1999.
- Stein, B., Wedekind, C., Wille, H., Immler, F., Müller, M., Wöste, L., del Guasta, M., Morandi, M., Stefanutti, L., Antonelli, A., Agostini, P., Rizi, V., Readelli, G., Mitev, V., Matthey, R., Kivi, R., and Kyrö, E.: Optical classification, existence temperatures, and coexistence of different polar stratospheric cloud types, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 104, 23983–23993, <https://doi.org/10.1029/1999JD900064>, 1999.
- Stone, K. A., Solomon, S., Kinnison, D. E., and Mills, M. J.: On Recent Large Antarctic Ozone Holes and Ozone Recovery Metrics, *Geophys. Res. Lett.*, 48, e2021GL095232, <https://doi.org/10.1029/2021GL095232>, 2021.
- Tencé, F., Jumelet, J., Bekki, S., Khaykin, S., Sarkissian, A., and Keckhut, P.: Australian Black Summer Smoke Observed by Lidar at the French Antarctic Station Dumont d’Urville, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 127, e2021JD035349, <https://doi.org/10.1029/2021JD035349>, 2022.
- Tesche, M., Achtert, P., and Pitts, M. C.: On the best locations for ground-based polar stratospheric cloud (PSC) observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 505–516, <https://doi.org/10.5194/acp-21-505-2021>, 2021.
- Toon, O. B., Browell, E. V., Kinne, S., and Jordan, J.: An analysis of lidar observations of polar stratospheric clouds, *Geophys. Res. Lett.*, 17, 393–396, <https://doi.org/10.1029/GL017i004p00393>, 1990.
- Tritscher, I., Groöß, J.-U., Spang, R., Pitts, M. C., Poole, L. R., Müller, R., and Riese, M.: Lagrangian simulation of ice particles and resulting dehydration in the polar winter stratosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 543–563, <https://doi.org/10.5194/acp-19-543-2019>, 2019.
- Tritscher, I., Pitts, M. C., Poole, L. R., Alexander, S. P., Cairo, F., Chipperfield, M. P., Groöß, J.-U., Höpfner, M., Lambert, A., Luo, B., Molleker, S., Orr, A., Salawitch, R., Snels, M., Spang, R., Woiwode, W., and Peter, T.: Polar Stratospheric Clouds: Satellite Observations, Processes, and Role in Ozone Depletion, *Rev. Geophys.*, 59, e2020RG000702, <https://doi.org/10.1029/2020RG000702>, 2021.
- Tsias, A., Wirth, M., Carslaw, K. S., Biele, J., Mehrtens, H., Reichardt, J., Wedekind, C., Weiss, V., Renger, W., Neuber, R., von Zahn, U., Stein, B., Santacesaria, V., Stefanutti, L., Fierli, F., Bacmeister, J. T., and Peter, T.: Aircraft lidar observations of an enhanced type Ia polar stratospheric clouds during APE-POLE-CAT, *J. Geophys. Res.*, 104, 23961–23969, 1999.
- Wegner, T., Groöß, J.-U., von Hobe, M., Stroh, F., Sumińska-Ebersoldt, O., Volk, C. M., Hösen, E., Mitev, V., Shur, G., and Müller, R.: Heterogeneous chlorine activation on stratospheric aerosols and clouds in the Arctic polar vortex, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 11095–11106, <https://doi.org/10.5194/acp-12-11095-2012>, 2012.
- Winker, D. M., Vaughan, M. A., Omar, A., Hu, Y., Powell, K. A., Liu, Z., Hunt, W. H., and Young, S. A.:

Overview of the CALIPSO Mission and CALIOP Data Processing Algorithms, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 26, 2310–2323, <https://doi.org/10.1175/2009JTECHA1281.1>, 2009.

WMO (World Meteorological Organization): Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2018, Global Ozone Research and Monitoring Project – Report No. 58, Geneva, Switzerland, 588 pp., <https://csl.noaa.gov/assessments/ozone/2018/> (last access: 29 December 2022), 2018.

Annexe B : Australian Black Summer Smoke
Observed by Lidar at the French Antarctic Station
Dumont d'Urville

**Florent Tencé, Julien Jumelet, Slimane Bekki, Sergey Khaykin, Alain Sarkissian and
Philippe Keckhut**

Janvier 2022

JGR Atmospheres

RESEARCH ARTICLE
10.1029/2021JD035349

Special Section:

Stratospheric aerosol during the post Pinatubo era: processes, interactions, and impact

Key Points:

- 2019–2020 Australian bushfires injected an unprecedented amount of aerosol into the stratosphere with impact at polar latitudes
- Longest ground-based lidar smoke aerosol record acquired at Dumont d'Urville with persistent 532 nm scattering ratio throughout the year 2020
- Simultaneous presence of polar stratospheric clouds and smoke aerosols were observed during the wintertime

Supporting Information:

Supporting Information may be found in the online version of this article.

Correspondence to:

F. Tencé,
florent.tence@latmos.ipsl.fr

Citation:

Tencé, F., Jumelet, J., Bekki, S., Khaykin, S., Sarkissian, A., & Keckhut, P. (2022). Australian Black Summer smoke observed by lidar at the French Antarctic station Dumont d'Urville. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 127, e2021JD035349. <https://doi.org/10.1029/2021JD035349>

Received 4 JUN 2021
Accepted 7 JAN 2022

© 2022. American Geophysical Union.
All Rights Reserved.

Australian Black Summer Smoke Observed by Lidar at the French Antarctic Station Dumont d'Urville

Florent Tencé¹ , Julien Jumelet¹ , Slimane Bekki¹, Sergey Khaykin¹ , Alain Sarkissian¹, and Philippe Keckhut¹ 

¹LATMOS, Laboratoire Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales, UMR CNRS, IPSL, Sorbonne University/UVSQ, Paris, France

Abstract In the follow-up of the Australian "Black Summer" event that persisted from August 2019 to March 2020, we present the optical properties of the stratospheric aerosols injected into the atmosphere by these wildfires. The outbreak of pyrocumulonimbus (PyroCb) activity triggered between 2019/12/29 and 2020/01/04 has raised the stratospheric aerosol load of the Southern Hemisphere to unprecedented levels. Long-range transport brought some of the plumes down to the Antarctic region, where general circulation patterns kept them circling around the continent. The 532 nm Rayleigh/Mie/Raman ground-based lidar of the French Antarctic station Dumont d'Urville (66.6°S–140°E) acquired unprecedented time series of these carbonaceous aerosols starting approximately 20 days after the injection and up to the most recent measurements in October 2019 where local radiosonde reported anomalous ozone depletion as compared to the decadal average. The lidar provides a first and unique time series at high vertical and temporal resolution, complemented by satellite measurements from Ozone Monitoring Instrument, Ozone Mapping and Profiler Suite, and Microwave Limb Sounder. Aerosol backscatter ratio decreases from 1.9 to 1.2 between January and June 2020. Aerosol origin and persistence are characterized, as well as their optical properties and vertical distribution over several months.

Plain Language Summary Major wildfires are now known to significantly contribute to the stratospheric aerosol load, which in turn may have consequences at the global scale. The deep convection and radiative uplift processes that they can spark, now colloquially referred to as pyroconvection, can inject significant quantities of aerosols into the stratosphere. The major wildfires that raged in Australia at the end of 2019 are a case in point: they injected an unprecedented amount of material into the stratosphere. After some weeks and due to the general circulation patterns, a part of this material ended up trapped above the Antarctic region. The lidar located at the French Antarctic station Dumont d'Urville had a unique opportunity to probe these stratospheric aerosols for an extended time period, allowing to observe the evolution in time of their optical properties over months. This study presents these valuable measurements which contribute to our knowledge of biomass-originated stratospheric aerosols and highlights the importance of operational ground-based instrumental capabilities and coverage at high latitudes.

1. Introduction

Australia experienced an unprecedented fire season from August 2019 to March 2020, now colloquially named "Black Summer" (Davey & Sarre, 2020). While the country regularly experiences seasonal bushfires (Cheney, 1976; Lucas et al., 2007; Sharples et al., 2016), the 2019/2020 events broke records in both duration and intensity (Davey & Sarre, 2020). High temperatures and severe droughts are key parameters influencing the extent of bushfires (McArthur, 1967). A warming climate, therefore, favors a higher frequency of severe wildfire episodes during the fire season (Clarke et al., 2013; Dowdy et al., 2019; Hennessy, 2006). For this reason, it is critical to study their impact on a large scale as transport processes that may, for example, involve the development of local PyroCumulonimbus (PyroCb) can inject large quantities of material directly into the stratosphere, where the residence time of aerosols is not limited by cloud scavenging and precipitation.

The dynamics of the stratospheric Antarctic winters at high latitudes are characterized by strong rotating winds encircling the Antarctic continent from around May to October. This stratospheric cyclonic wind pattern, referred to as the Antarctic polar vortex, maintains the cold Antarctic central region relatively isolated from mid-latitude warmer air mass incursions during the winter. Winter polar temperatures are generally so low that different types

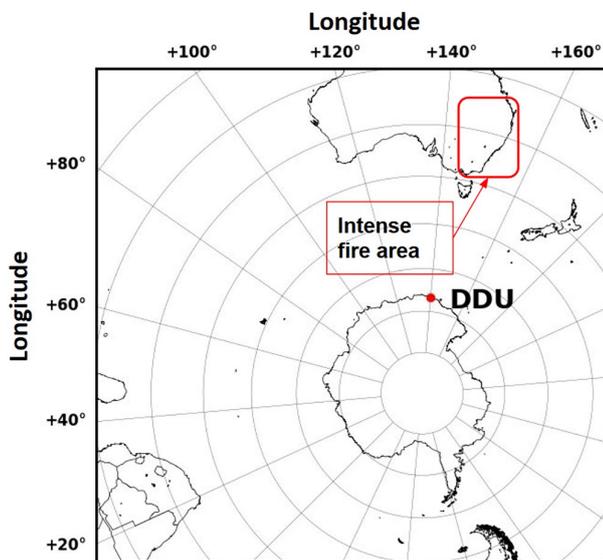


Figure 1. Map of Australia and the French Antarctic Station Dumont d'Urville (66°S–140°E). The red frame encloses the intense fire area (Peterson et al., 2021).

of Polar Stratospheric Clouds (PSC) form within the polar vortex. PSCs are essential in the formation of the ozone hole because, through their heterogeneous chemistry, they convert stratospheric reservoir species (ClONO_2 , HCl, HBr) into active radicals (ClO, BrO) that catalyze ozone destruction.

Stratospheric aerosols have an important direct impact on the Earth's radiative budget by reflection and absorption of solar radiation, along with other indirect effects like enhancing nucleation processes (Charlson et al., 1992; Penner et al., 2001). While the role of stratospheric aerosols has now been studied for years, a lot remains to be understood as recent investigations also lead to additional challenges (for instance regarding stratospheric trends, the effect of climate change [Kremser et al., 2016], or the contribution of wildfires to the stratospheric aerosol load [Khaykin et al., 2020; Peterson et al., 2017, 2021]). Moderate volcanic activity is now acknowledged as a major source of stratospheric sulphate aerosols (Bègue et al., 2017; Khaykin et al., 2018), especially in the case of regular eruptions. The separation of quiescent and volcanic regimes is still a challenge for the monitoring networks despite recent improvements, especially in the spaceborne capabilities. Volcanic aerosols impact the climate, as well as enhance stratospheric ozone depletion (Kremser et al., 2016). Obviously, the most pronounced impacts occur during major eruptions. For example, the Mount Pinatubo eruption led to a global surface cooling of around 0.5°C. Furthermore, many uncertainties still remain on the scale and strength of the impact of biomass-originated aerosols injected into the stratosphere. A recent study (Martinsson et al., 2019) suggests that the amount of carbonaceous aerosols in the stratosphere is still

underestimated. In addition, in situ measurement campaigns remain rare and detection of fine aerosol plumes is difficult. From the ground, the fine plumes may be missed due to the static position of the instrument and moving air masses. From a spaceborne geometry, instrumental calibration gets of primary importance due to the fine associated optical properties. As for the lidar instrument, aerosol speciation requires an extensive set of observables (scattering ratio or color ratios, depolarization ratio, lidar ratio when available) along with a good Signal-to-Noise Ratio (SNR).

Strong fire activity triggering pyroCb events are now thoroughly documented (Dowdy et al., 2017, 2019; Fromm et al., 2006, 2010; McRae et al., 2015; Peterson et al., 2017; Tory et al., 2018). Several important pyroCb events occurred between 29 December 2019 and 4 January 2020 (Kablick et al., 2020; Khaykin et al., 2020) injecting a considerable amount of fire smoke containing aerosols into the stratosphere. This material then experienced long range transport over thousands of kilometers (Khaykin et al., 2020; Ohneiser et al., 2020) to finally, for a fraction of it, reach high southern latitudes over the Antarctic region. Although stratospheric transport of biomass burning aerosol over the Antarctic region has already been confirmed (Fiebig et al., 2009; Jumelet et al., 2020), the 2019/2020 events reached an unprecedented level in terms of ground emissions and atmospheric impact (Davey & Sarre, 2020; Kablick et al., 2020; Khaykin et al., 2020). Using top of the atmosphere flux measurements, Hirsch and Koren (2021) estimated that the injected aerosols led to cooling by more than 1.0 ± 0.6 watts per square meter over cloud-free oceanic waters.

A large number of satellite missions monitor the global evolution of such stratospheric events both in terms of gas composition (Microwave Limb Sounder - MLS, Ozone Monitoring Instrument - OMI, Infrared Atmospheric Sounding Interferometer - IASI, Atmospheric Infrared Sounder - AIRS) and particle content (Ozone Mapping and Profiler Suite - OMPS, Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation - CALIOP aboard CALIPSO). However, fine plumes of aged aerosols, either containing sulfur or carbon, tend to display overlapping optical properties that are often close to the detection threshold of spaceborne active sounders (Baars et al., 2019; Hu et al., 2019; Jumelet et al., 2020). Ground-based lidar facilities remain best suited to complement satellite instruments due to their fine vertical resolution and sampling rate, at the cost of coverage especially in polar areas due to the low density of monitoring stations.

In this study, we use lidar measurements from the French Antarctic station Dumont d'Urville (see Figure 1 for the locations of DDU and Australian 2019–2020 wildfire area), along with satellite measurements and trajectory

modeling to characterize the smoke aerosols originated from the Australian 2019/2020 wildfires. First, in Section 2, we provide a brief description of the 2019/2020 Australian bushfire event. Second, the instruments and data specifications are presented in Section 3. Then, in Section 4, our observations and results are discussed and characterization of the wildfire aerosols is provided along with estimates of the optical properties that we compare against the results provided in the literature available on similar events. Conclusions are provided in Section 5.

2. Event Description

The fire season started in August 2019 (Davey & Sarre, 2020) in the regions of Queensland and New South Wales. The major fires were declared to be under control and extinguished by early March. The events referred to as "Black Summer" spread over several states and burnt a total area of $\sim 103,000$ km², almost twice as much as any previous bushfire event in Australia (Davey & Sarre, 2020). The fires burnt to ashes more than 8 million ha of native forest, mostly eucalyptus forest (Peterson et al., 2021), and significantly affected local biodiversity along with many casualties. The smoke generated by these fires drastically reduced air quality in the cities of Queensland, New South Wales, Australian Capital Territory, and Victoria regions, leading to an unprecedented smoke-related health burden (Borchers Arriagada et al., 2020).

The factors leading to such an important fire season are numerous, mainly severe droughts and extremely hot temperatures (Adams et al., 2020; Nolan et al., 2020). Several studies investigate the specific combination of climatic drivers (the El Niño Southern Oscillation, the Indian Ocean Dipole, and the South Annular Mode) that could lead to such climatic conditions in Australia (Cai et al., 2009; Lim et al., 2019). Lim et al. (2019) suggested a link between the Australian climatic conditions in 2019–2020 and the important Sudden Stratospheric Warming that occurred in the Southern Hemisphere in 2019 (Safieddine et al., 2020).

At the end of December 2019, several pyroCb events injected significant smoke plumes into the stratosphere, enabling large scale travel: Kablick et al. (2020) accounted for at least 18 pyroCb events between 2019/12/29 and 2020/01/04. On 2020/01/05, the smoke plume had reached Chile, traveling more than 11,000 km (Ohneiser et al., 2020). Wildfire aerosols progressively spread across the southern hemispheric stratosphere, significantly increasing its aerosol concentration. The present study only focuses on the specific smoke plumes that reached high southern latitudes and circulated around Antarctica. Approximately 20 days after the pyroCb events, the smoke from Australian Black Summer was detected for the first time at the French Antarctic station Dumont d'Urville.

3. Instruments and Data Sources

3.1. Dumont d'Urville Lidar

Since April 1989, an aerosol/cloud lidar system is in operation at the French Antarctic station DDU (66°S–140°E) in the framework of the Network for Detection of Atmospheric Composition Changes (NDACC). Originally designed as a PSC monitoring instrument, its capabilities have been extended to study aerosol and cirrus clouds in the Antarctic atmosphere. The measurement calendar focuses on the PSC season with nighttime setup, still, the exceptional events we report lead us to carry out summer time measurements.

The Rayleigh/Mie/Raman lidar operates at the 532 nm wavelength. N_2 vibrational Raman scattering at 607 nm is also acquired. A complete description of both the instrumental design and inversion procedure is featured in David et al. (2012). The Nd:YAG laser source emits at 10 Hz frequency with around 250 mJ emitted power in the visible. Backscattered photons are collected on a collocated 80 cm diameter Newton telescope. A polarizing cube at the reception splits the beam into two components polarized parallel and perpendicular to the laser emission for the 532 nm wavelength, each component is recorded and inverted to gain access to the depolarization ratio. In this study, we use the aerosol depolarization value defined as the ratio between the perpendicular and parallel particulate backscatter coefficients.

Aerosol vertical profiles will be considered as Backscattering Ratio or Scattering Ratio profiles (hereafter called SR) expressed as the ratio of the total scattering (i.e., including Mie Scattering) to the molecular scattering at a given altitude. Potential saturation effects in the tropopause, as well as background noise at mesospheric altitudes, are removed from lidar signals. The best time integration window is selected based on the homogeneity of the scene featured on the attenuated SR. Finally, signal inversion is performed using the Klett-Fernald formalism

(Fernald, 1984; Klett, 1981, 1985) to derive individual SR profiles. The lidar inversion is sensitive to the molecular density and the clear-air reference altitude. Collocated radiosondes are used to estimate reference atmospheric density and interpolation. Scaling to ERA5 daily meteorological data is done at balloon burst altitude (between 20 and 30 km, depending on the season) and clear-air altitude is set between 28 and 32 km according to the signal dynamics. Required Lidar ratio (LR) estimates are based on background aerosols (LR = 50 sr) climatological values and for the current study, when the SNR is high enough we also use the Raman derived LR from the 607 nm channel using the formalism expressed in Ansmann et al. (1992) and Ohneiser et al. (2020). Still, the laser emitted power is only sufficient to derive particle extinction from the 607 nm N₂ Raman channel up to the 20 km altitude most of the time, which is high enough for investigating this event.

The SR uncertainty is first related to statistical fluctuations of the measured lidar signal with random detection processes estimated using a Poisson distribution from the number of photons received. It is around 2% on the parallel channel and below 5% on the perpendicular channel for smoke layers, as increased backscatter leads to smaller uncertainty. In this paper, the uncertainty on the Rayleigh contribution is estimated to be below 2% using sensitivity calculations of the Rayleigh backscatter coefficient accounting for temperature differences derived from comparisons between ERA5 and local radiosondes. For the lidar ratio, using the 607 nm N₂ Raman channel helps in decreasing the uncertainty originating from the LR assumption in the Klett procedure, which is expected to be around 20% (David-Beausire et al., 1998). Based on years of aerosol lidar data, the total uncertainty on the SR is estimated to be around 7% on SR_{||} up to 28 km, following the approach of David-Beausire et al. (1998) and Chazette et al. (1995). On the perpendicular channel, the signal has a lower SNR, leading to a greater uncertainty on the clear-air reference taken above 25 km during the inversion. The retrieval procedure is described in detail in David-Beausire et al. (1998) giving an overall altitude-dependent uncertainty from 10% to 30%. Depolarizing material such as smoke aerosols generates higher perpendicular backscatter coefficients, resulting in higher SNRs and therefore lower uncertainties. The discussion part only uses estimates of the optical properties up to the 20 km altitude and using a batch of clear-air night-time aerosol lidar data acquired at Dumont d'Urville during April (before the PSC season) in the last couple of years, we statistically estimate the uncertainty on SR around 20%.

Overall, The total 532 nm SR is calculated from the parallel and perpendicular backscatter ratio accounting for the influence of the molecular depolarization ratio (0.44% in this case – Behrendt & Nakamura, 2002). Obviously, the longer the lidar time integration window, the lower the uncertainty. Using the averaged SR values presented in this paper as a reference and considering the above uncertainties on both SR_{||} and SR_⊥, the total uncertainty on the scattering ratio is therefore estimated at around 30% for profiles determined on integration windows of less than 1h30, and 20% beyond 2h time integration. As for the depolarization ratio, following the methodology also presented in David et al. (2012) and still assuming larger uncertainties on the aerosol depolarization ratio $\delta(z)$ rather than on the linear volume depolarization ratio at relevant altitudes in this paper we estimate the error on $\delta(z)$ at around 30%.

3.2. Ozone Mapping and Profiler Suite (OMPS) Satellite - Limb Profiler

The Limb Profiler (LP) instrument is part of the Ozone Mapping and Profiler Suite onboard the Suomi National Polar-orbiting Partnership (NPP) satellite launched in October 2011. The OMPS/LP performs simultaneous measurements of the Earth's sun-lit limb. The instrument provides radiance profiles for wavelengths ranging from 290 to 1,000 nm. The OMPS/LP has global spatial coverage and about 14.5 orbits per day each measuring three limb profiles thanks to three slits: a central one along the orbital track and two slits that are offset by 4.25° from the orbital track. The vertical resolution of the retrieved profiles is approximately 1.8 km. More detailed information on the OMPS/LP instrument can be found in (Flynn et al., 2014; Jaross et al., 2014; Rault & Loughman, 2013). In this study, we used the aerosol extinction product, which is based on the radiance measurements at 675 nm. The version 1.5 aerosol algorithm described in (Chen et al., 2018) is used to retrieve aerosol extinction vertical profiles in km⁻¹.

3.3. Ozone Measuring Instrument (OMI) Satellite

Launched in July 2004, the Dutch-Finnish Ozone Monitoring Instrument (OMI) is one of the four sensors onboard the NASA Earth Observing System (EOS) Aura mission (Levelt et al., 2006). OMI is a spectrograph measuring the upwelling radiance at the top of the atmosphere in the 270–500 nm wavelength range (Torres

et al., 2007). Its spatial resolution ranges from 13×24 km at nadir to about 28×150 km at the extremes of the swath. OMI is dedicated to the monitoring of ozone, but criteria pollutants such as NO_2 , SO_2 , BrO, HCHO, OCIO, and aerosols are also retrieved from OMI radiance measurements. It is therefore perfectly suited to detect smoke plumes and aerosols produced by volcanic eruptions or biomass fires.

The level 3 UV Aerosol Index (UV AI) product used in this study has a spatial resolution of $1^\circ \times 1^\circ$. This product is retrieved using the near-UV aerosol retrieval algorithm OMAERUV detailed in (Torres et al., 2007). The UV AI measures how the wavelength dependence of backscattered UV radiation from the probed atmosphere differs from that of a pure molecular atmosphere, that is, pure Rayleigh scattering. It is expressed as follows:

$$AI = 100 * \log \left(\frac{I_{360nm_{measured}}}{I_{360nm_{calculated}}} \right) \quad (1)$$

Therefore, the UV AI is positive when sounding absorbing aerosols, negative when sounding non-absorbing aerosols and close to zero for a theoretical unperturbed atmosphere. In this study, the UV AI data are smoothed on a 3 days window.

3.4. Microwave Limb Sounder (MLS) - Aura Satellite

The Microwave Limb Sounder (MLS) is one of the four instruments on board the NASA EOS Aura Mission, launched on 15 July 2004. MLS provides measurements of the atmospheric gaseous composition by detecting thermal microwave limb emission from a number of atmospheric molecules in the range from 118 GHz to 2.5 THz (Waters et al., 2006). Aura offers global coverage with 15 orbits per day on average. Unlike shorter-wavelength instruments, MLS offers the advantage to conduct measurements in the presence of ice clouds and aerosols.

In this study, the level 2 products of mixing ratio of carbon monoxide (CO) and water vapor (H_2O) are used to follow the stratospheric implications of the 2019–2020 Australian wildfires. Both products have a horizontal resolution of 165×3 km and a vertical resolution between 1.5 and 6 km. More information on these products can be found in (Livesey et al., 2007). According to the MLS data quality document, at the relevant pressure levels, the accuracy of MLS is 8%–15% for H_2O measurements and $\pm 30\%$ for CO measurements. In this study, both products are smoothed on a 10 days time window.

3.5. Hysplit Trajectories

The Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory (Hysplit) model developed by NOAA and Australia's Bureau of Meteorology was used to compute air parcel backward trajectories (Rolph et al., 2017; Stein et al., 2016). In this study, we use Hysplit in its standard setup to generate backward trajectories of air parcels in order to establish source-receptor relationships. The computed trajectories all end at DDU from January to June 2020 at altitudes between 10 and 20 km. The calculations were based on GDAS1 reanalysis data. The run duration is usually set between 200 and 315 hr in order to capture the long-range transport of aerosols detected at DDU.

4. Observation and Results

To get the most out of the ground-based lidar time series and link the measurements to the Australian fire event, the overall stratospheric aerosol load is first investigated using satellite data. Figure 2 displays the daily mean UV AI south of 30°S latitude (gray and black lines) and within a domain centered around DDU station ($61.5\text{--}71.5^\circ\text{S}$, $130\text{--}150^\circ\text{E}$; red lines) for the year 2019/20 in comparison to the averaged value on the 10 previous years. This graph highlights the sheer impact of the Australian-originated plume injections as seen in the UV from OMI. The pyroCb events almost doubled the mean UV AI south of 30°S as compared to the 10 previous years. The red line, corresponding to the area around DDU, shows, as expected, a more progressive increase and also exceeds the decadal mean from January 1st.

The OMPS/LP instrument complements OMI measurements with spectral bands closer to the aerosol-sensitive spectral ranges. The 675 nm aerosol extinction product is well suited to aerosol plumes being close to the 532 nm lidar wavelength. The aerosol extinction is averaged in the area ranging from 61.6°S to 71.6°S and from 130°E

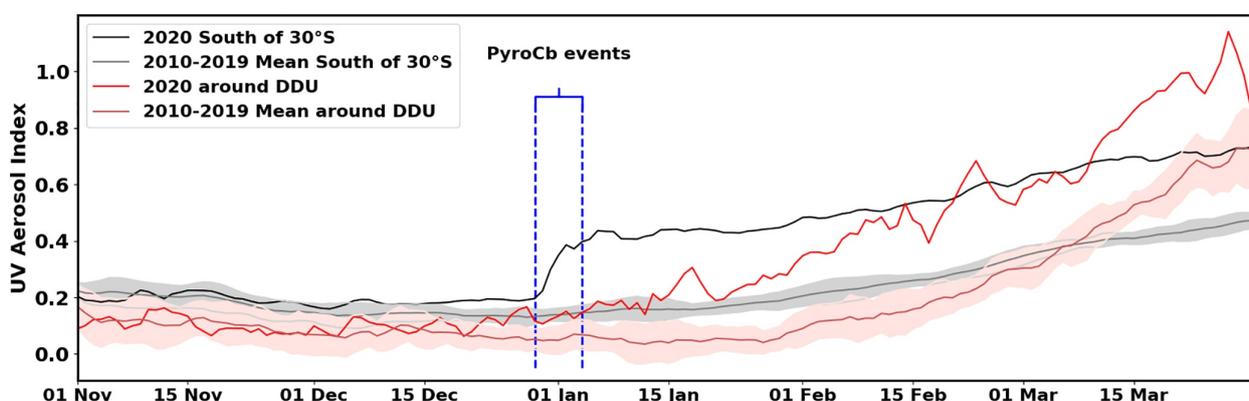


Figure 2. Mean Ozone Monitoring Instrument UV Aerosol Index south of 30°S (black line for 2019–2020, gray line for 2010–2019 mean) and in the domain 61.5°S–71.5°S; 130°E–150°E around Dumont dUrville station (red line for 2019–2020, pale red line for 2010–2019 mean). Standard deviation of the 10-year mean is shaded color. Dashed blue lines show the time period of the pyroCb injections reported by (Kablick et al., 2020).

to 150°E. Figure 3a is a time series of the aerosol extinction in this domain as a function of altitude, from 10.5 to 30.5 km.

In this time series, we note the sharp increase of the aerosol extinction starting on 2020/01/17 and 2020/01/18, with aerosol layers present within a broad layer between about 11 and 20 km. In order to compare the extracted OMPS data with DDU lidar measurements, we produced a time series of the lidar 532 nm scattering ratio shown in Figure 2b using the same time sampling. The white bands on this time series (Figure 3b) correspond to days where lidar measurements are not available. The instrument is designed for the winter season, and operability during the summer time is reduced, however during polar summer 2019/2020, the lidar is operated in daylight mode. The first aerosol signatures are detected between 2019/11/04 and 2019/11/08. Figure 3c shows a close-up of those early aerosol lidar measurements. During five consecutive days, the lidar at DDU detected a persistent signal slightly above 15 km, with a 532 nm SR around 1.2 and presented a depolarization ratio close to zero (not shown). Then the DDU lidar scene only features clear sky situations until 2020/01/12 when a low aerosol signal is detected.

The origin of the aerosol plume detected at DDU in early November remains unclear from the available datasets. It could be an early injection from the Australian wildfires but no significant stratospheric injections have been reported before 2019/12/29 (Khaykin et al., 2020; Kablick et al., 2020; Peterson et al., 2017). According to Kloss et al. (2021), it could also be sulfated aerosols injected by the Ulawun eruptions (2019/06/21 and 2019/08/03) since the authors showed that part of the volcanic material injected in the stratosphere was transported toward high southern latitudes (Kloss et al., 2021 - Figure 5). However, this hypothesis is not supported by the stratospheric CO increase measured by MLS (see right below - Figure 4) south of 65°S. Finally, fires that took place in South West Africa from June–August 2019 seem to be associated with high southern latitude aerosol transport, according to OMI UV AI maps (not shown) and OMPS UV AI publicly available on the EOSDIS Nasa Worldview platform. Considering the previous arguments, we favor the African wildfires origin. This example highlights that, despite extensive satellite coverage and instrumental spectral capabilities, it is not possible to conclude with certainty on the origin of an aerosol plume detected at DDU in November for five consecutive days.

Starting from 2020/01/19, strong aerosol signals with 532 nm SR above 1.4 were measured on an increasing altitude extent, which is consistent with OMPS-LP observations in Figure 3a. Behavior of the extinction follows the one of the SR assuming the aerosol population has a constant homogeneous chemical composition, hence, lidar ratio.

OMI UV Aerosol Index and OMPS 675 nm aerosol extinction presented in Figures 2 and 3 clearly show significantly distinct values from the background at the beginning of 2020 below 30°S and around DDU. The OMI and OMPS instruments measure the aerosol phase but to refine the event tracking it may be useful to also analyze the density of two gas phase chemical tracers typically linked to wildfires events and tracing pyroCb transport: CO and H₂O. We use MLS measurements as they cover high latitudes all year long. We compute the mean density of

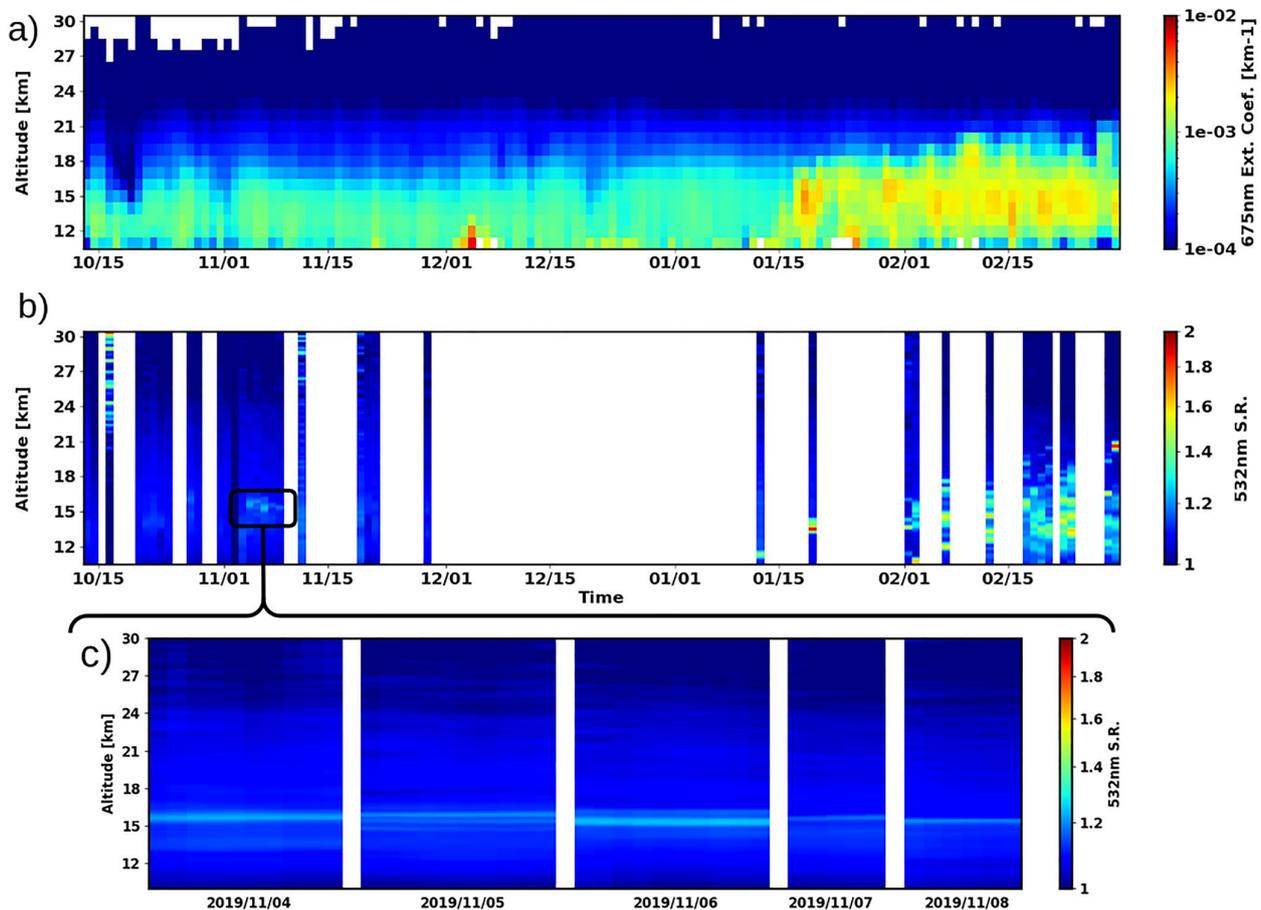


Figure 3. Time series from 2019/10/13 to 2020/02/29 of (a) Ozone Mapping and Profiler Suite 675 nm aerosol extinction coefficient (km^{-1}) averaged on the domain ranging from 61.6°S to 71.6°S and 130°E to 150°E and of (b) 532 nm scattering ratio (S.R.) measured by the lidar at the French Antarctic station Dumont dUrville. (c) Close-up of (b) time series from 2019/11/04 to 2019/11/08.

the species in two areas: above Antarctica (taken as below 65°S and over DDU [61.6° – 71.6°S , 130° – 150°E]) at two pressure levels, 146 hPa and 100 hPa. These levels correspond to the aerosol layers in the lower stratosphere: depending on the season, the 146 hPa level corresponds to altitudes between 12.5 and 13.5 km and the 100 hPa to altitudes between 14.7 and 16 km. Over these two areas, we compare in Figure 4 the CO and H_2O densities from July to June of the years 2019–2020 with the past decade's mean.

Both CO and H_2O densities reach above average values in 2019–2020. At 146 hPa over Antarctica (Figure 4c), we notice that CO and H_2O densities significantly increase as early as October 2019. This early increase is in agreement with the first aerosol measurements at DDU in November 2019 shown in Figure 3c. At 100 hPa over Antarctica (Figure 4a), the impact of the pyroCb events (delimited by the vertical black dashed lines) is clear. The 2019–2020 CO density, which is slightly above average since September 2019, sharply increases at the beginning of 2020. The behavior is smoother for the H_2O mixing ratio at 100 hPa, but we still see that it clearly separates from the past 10 years standard deviation after the pyroCb events.

Above DDU, the variability of plume densities is higher due to the spatial sampling inside the smaller domain. Nevertheless, we notice the impact of the pyroCb events on the CO mixing ratio at both the 100 hPa and 146 hPa levels. This clear signature is visible from January 1st in Figures 4b and 4d. Due to the limited domain centered around the DDU station and the associated MLS uncertainties at the considered levels, stating the presence of smoke aerosol is only possible using additional analyses of smoke transport toward DDU.

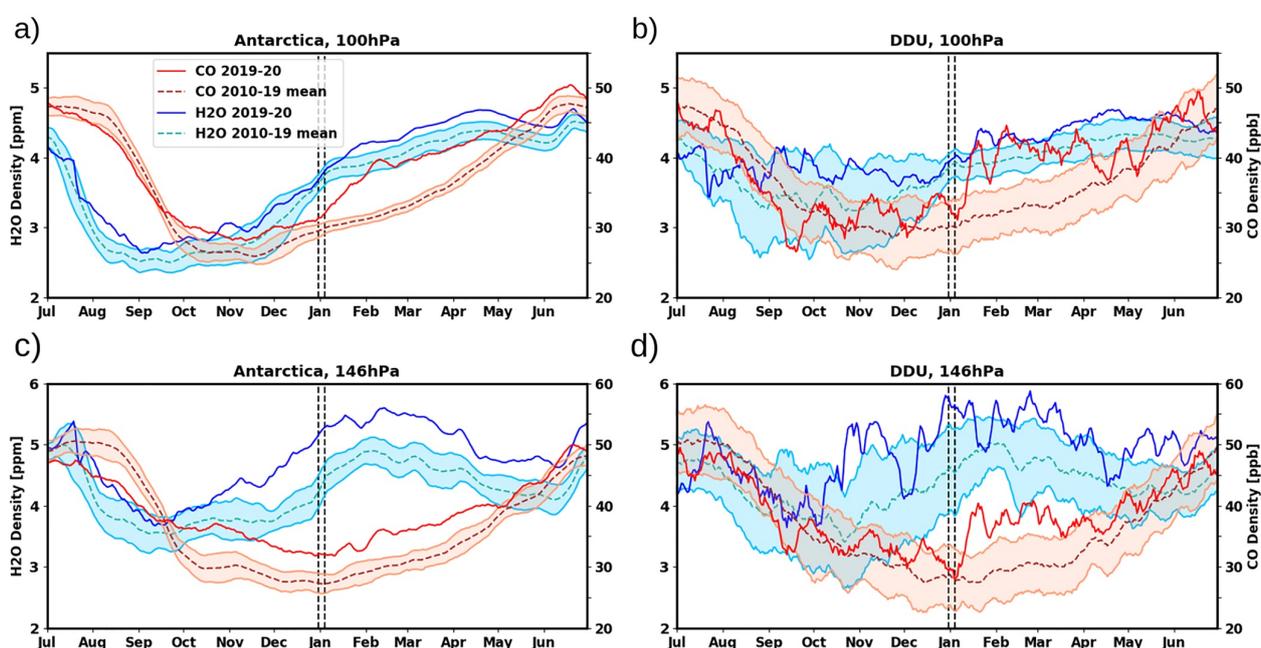


Figure 4. Microwave Limb Sounder concentration of H₂O (blue lines) and CO (red lines) at 100 hPa (top) and 146 hPa (bottom) above Antarctica (left) and above Dumont d'Urville (DDU) (right). The area around DDU includes latitudes between 61.6°S and 71.6°S and longitudes between 130°E and 150°E. Antarctica is taken as below the 65°S latitude line. The x-axis starts in July 2019 and ends in June 2020. The solid blue and red lines show the 2019–2020 concentrations while the dashed lines represent the mean for the 2010–2019 period. The shaded areas represent the standard deviations. The dashed black vertical lines delimit the period of the main pyroCb events of the 2019–2020 Black Summer.

The Hysplit backward trajectory presented in Figure 5 supports the above statement on the arrival of smoke aerosol above DDU since January. It shows that the air parcel at 13.5 km above DDU on 2020/01/19 at 16:00 UTC was 315 hr earlier, that is, on 2020/01/06 at 13:00 UTC above South America. Figure 5a is a map of OMI UV AI averaged on 2020/01/06 and 2020/01/07. The part of the trajectory corresponding to 2020/01/06 and 2020/01/07 is highlighted in green. This zone indeed presents a high UV AI. Figure 5b shows the same Figure for 2020/01/13 and 2020/01/14. The zone around the trajectory highlighted in green shows a higher UV AI than average, directly coming from the smoke plumes produced by the bushfires in Australia.

On 2020/01/19 the lidar at DDU recorded a clear optical signature related to the Australian bushfire aerosols (Figure 6a). The time and altitude of the aerosol layer match the OMPS/LP data presented in Figure 3a and are also consistent with the OMI data of Figure 2. The aerosol layer was detected in the range between 12.9 and 14.6 km with a maximum 532 nm SR value of 1.9 at 13.5 km. At the beginning of the trajectory shown in Figure 5, the height is between 14 and 15.4 km which corresponds to the altitude of the aerosol layer on the 9 January described in Ohneiser et al., 2020. The authors mentioned an aerosol signature on January 5th in their introduction without information about its altitude so we cannot relate it to our observations.

From 2020/01/19 onwards the lidar measurements in DDU show numerous fine layers between 10 and 20 km. The time series of these measurements shown in Figure 6f is consistent with the horizontal transport of aerosol layers from the lower latitudes mentioned previously. Detection of smoke aerosols before the PSC season is possible because carbonaceous aerosols are expected to slightly depolarize, which is not the case for sulfated aerosols, being liquid droplets of H₂SO₄/H₂O. During the winter season and PSC presence, the optical signature of the Australian-originated aerosols blends with the stronger ones of PSC layers at 532 nm, both in SR and depolarization ratios. Nevertheless, clear air profiles throughout the winter season constantly display enhanced aerosol load optical properties that do not match the expected sulfated background values (i.e., above SR > 1.1).

Figure 6f shows that the SR values decrease with time before the beginning of the PSC season in late June. The lidar profiles shown in Figures 6a–6c are obtained with measurements on respectively 2020/01/19, 2020/02/01,

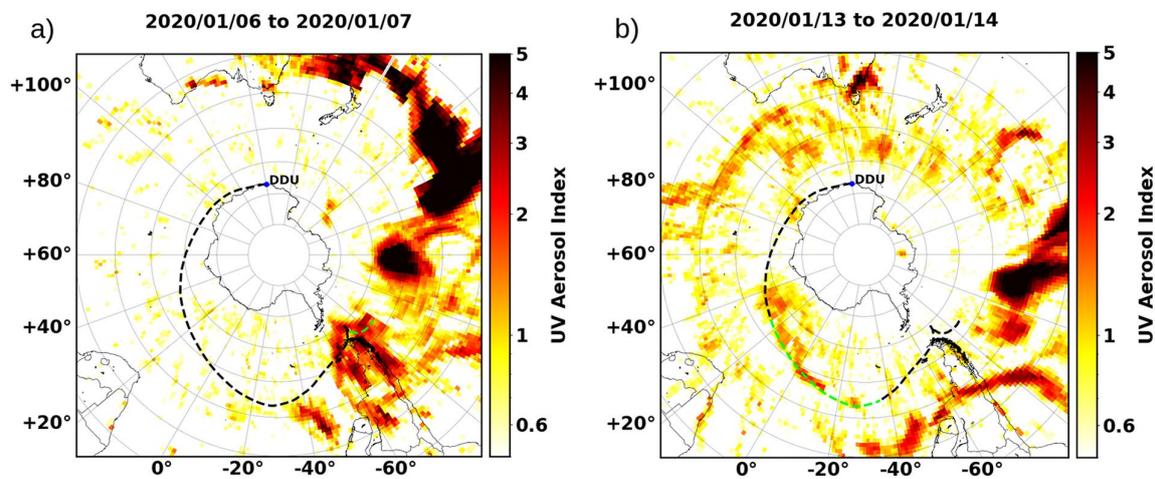


Figure 5. Maps of the Ozone Monitoring Instrument UV AI averaged between 2020/01/06 and 2020/01/07 (a) and between 2020/01/13 and 2020/01/14 (b). Hysplit backward trajectories of 315 hr ending at the French Antarctic station Dumont d'Urville on 2020/01/19 at 16:00 UTC at 13.5 km is shown in black dashed lines. The parts of the trajectories corresponding to the relevant dates are highlighted in green.

and 2020/02/20 and illustrate this evolution more precisely. The distinct layers at various altitudes observed in the time series are most likely signatures of new and fine plumes coming from lower latitudes convoluted in the first weeks to plumes having experienced circular transport around the continent. This statement is supported by additional trajectories shown in Annex 1. Temperature profiles from local radiosondes shown in blue in Figures 6a

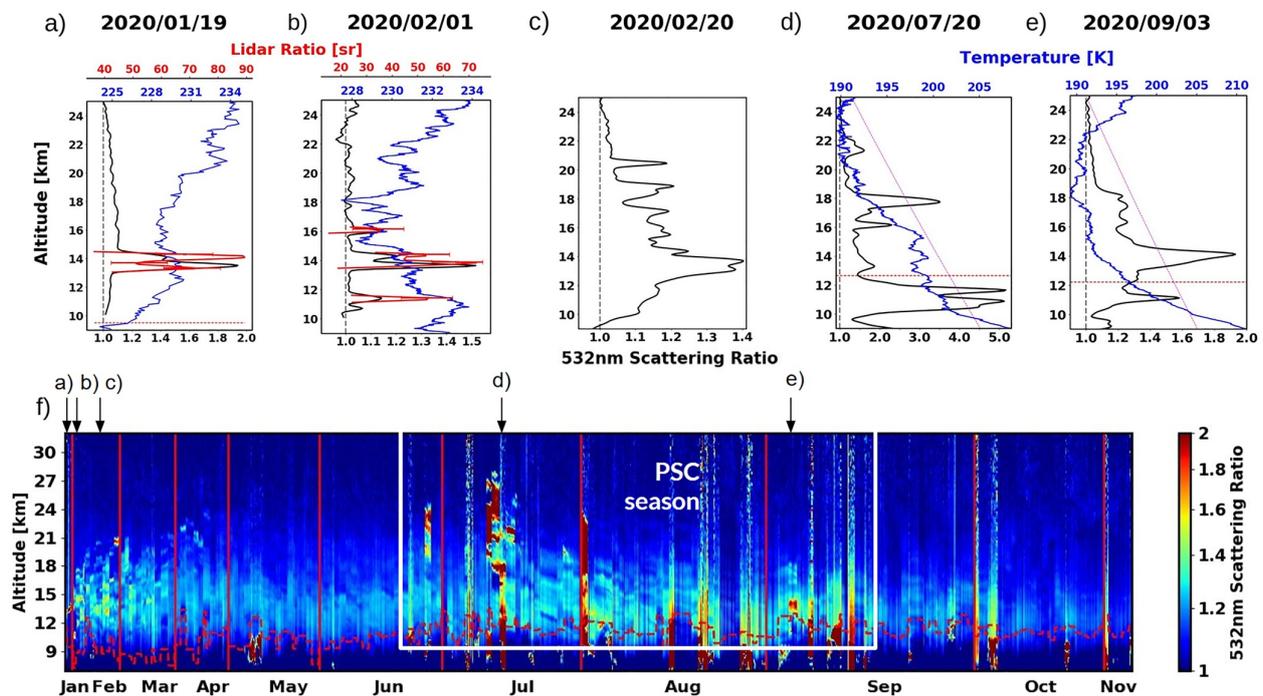


Figure 6. Lidar profiles acquired at Dumont d'Urville on 2020/01/19 (a), 2020/02/01 (b), 2020/02/20 (c), 2020/07/20 (d), and 2020/09/03 (e) are shown. On (a) and (b) the Lidar Ratio is plotted in red. Temperature from local radiosondes are shown in blue when available, as well as T_{NAT} temperature threshold in purple dashed line on (d) and (e). Time series of the 532 nm scattering ratio from 2020/01/12 to 2020/11/16 at DDU (f). The dashed red line indicates the location of the dynamical tropopause. Time scale is not linear and depends on lidar operation possibilities.

and 6b exhibit local peaks at heights corresponding to the aerosol layers which indicate the absorption capacity of the carbonaceous aerosols.

Figures 6d and 6e show lidar profiles from measurements during the winter season, on the 2020/07/20 (Figure 6d) and 2020/09/03 (Figure 6e) with potential PSC presence. Temperature profiles from local radiosondes are shown in blue on Figures 6d and 6e and help discuss the nature of the detected scattering layers together with the Nitric Acid Trihydrate (NAT) formation temperature threshold (T_{NAT}) shown in purple dashed line. PSCs cannot form above this temperature threshold (Tritscher et al., 2021). On 2020/07/20 (Figure 6d), the layers around 13.5 and 16 km present SR values of 1.8 and 2.3 respectively. These layers correspond to temperatures slightly below T_{NAT} but correspond to local temperature peaks, which is not what is expected in presence of PSCs. Despite the SR values being higher than what is expected for aerosols, it is difficult to conclude the nature of these layers. The layer at 18 km is more straight-forward to analyze: the high SR of 3.5 and the temperature significantly below T_{NAT} clearly indicate a PSC presence. This analysis is also applicable to Figure 6e, where the temperature clearly below T_{NAT} tends to classify the layer around 14 km as PSC.

Estimates of the lidar ratio are plotted in red in Figures 6a and 6b with values peaking between 70 and 90 sr within the plumes. The time average of the profiles is chosen high enough to keep the SNR high but no more than 2 hr to not blend the plume signal to clear air when the filament is not within the lidar field of view anymore. Those LR values are comparable to what Ohneiser et al. (2020) retrieved in Chile, weeks in advance at lower latitudes. Impact of some weeks of transport does not seem to alter the LR, but pushing the analysis is not really possible because retrievals with different time integration and pre-processing of the signal lead to an overall 15–20 sr uncertainty which is relatively high considering sulphate aerosols are expected to have LRs between 50 and 60 sr.

Still, the successful retrieval of the optical properties of these aerosols allows us to take advantage of the high vertical resolution (as compared to passive sensors) to gain access to the fine-scale plume evolution. Figure 7 shows four examples of lidar curtains obtained in 2020. Figures 7a and 7b present summertime observations, respectively on 2020/02/06 and 2020/03/23, while Figures 7c and 7d present observations during the PSC season, respectively on 2020/07/26 and 2020/08/05, together with the corresponding temperature profiles from local radiosondes (blue lines) and ERA5 reanalysis (green line). Associated depolarization ratio profiles are also shown (red lines). The laminated structure of the aerosol layers is clearly visible, especially in the earlier months of the year (Figure 7a) with higher backscatter values, but remain present over the months. Two elements come out of the comparison between Figures 7a and 7b. First, the 532 nm SR values decrease with time: they peak at 1.54 on 2020/02/06 and drop to 1.31 on 2020/03/23. This consistent trend is observed from the first aerosol measurements in 2020 until mid-June and the beginning of winter. Second, a larger amount of layers can be seen with an increased vertical extent in the early weeks. As a result of the high absorption property of carbonaceous aerosols, temperature profiles of Figures 7a and 7b exhibit a local positive anomaly at heights corresponding to the aerosol layers which are also partly resolved by ERA5 reanalysis.

During the wintertime, it becomes more difficult to discriminate between aerosol layers and PSC as previously stated. With maximum SR values above 1.4 around 13–16 km in panels of Figure 7, PSC layers dominated by NAT particles could be assumed, with a range of optical properties overlapping with those of the smoke aerosol (Achtert & Tesche, 2014). Nevertheless, the depolarization ratio below 5% supports the aerosol characterization, as the aged aerosols are expected to reduce their depolarization values (Dahlkötter et al., 2014) whereas equilibrated NAT crystals would have larger depolarization ratios. However, Supercooled Ternary Solution (STS) PSCs can present such SR values with depolarization values close to 0 (Achtert & Tesche, 2014). On the left panels of Figures 7c and 7d, T_{NAT} is shown in purple dashed line. On Figure 7c, temperatures from both radiosonde and ERA5 are above T_{NAT} , except for the layer around 17 km, where the temperature is close to T_{NAT} . However at this altitude, the depolarization ratio is close to 0 which would tend to advocate for a STS PSC but such PSCs are expected to occur several degrees below T_{NAT} . Therefore, we consider these layers as aerosols.

In Figure 7d, temperatures from both radiosonde and ERA5 are below T_{NAT} . Unfortunately, the radiosonde bursted as early as 16,5 km. Between the tropopause and 18 km, depolarization ratio peaks at 2.7% at 14.3 km and at 4% at 17 km, which could correspond to NAT or STS PSCs given the uncertainty of $\delta(z)$ and the strongly depolarizing cirrus layer at 10 km. On the other hand, temperatures from the radiosonde present a local peak at 11.25 km and 13.5 km which is not to be expected in presence of a PSC. These local temperature peaks, even

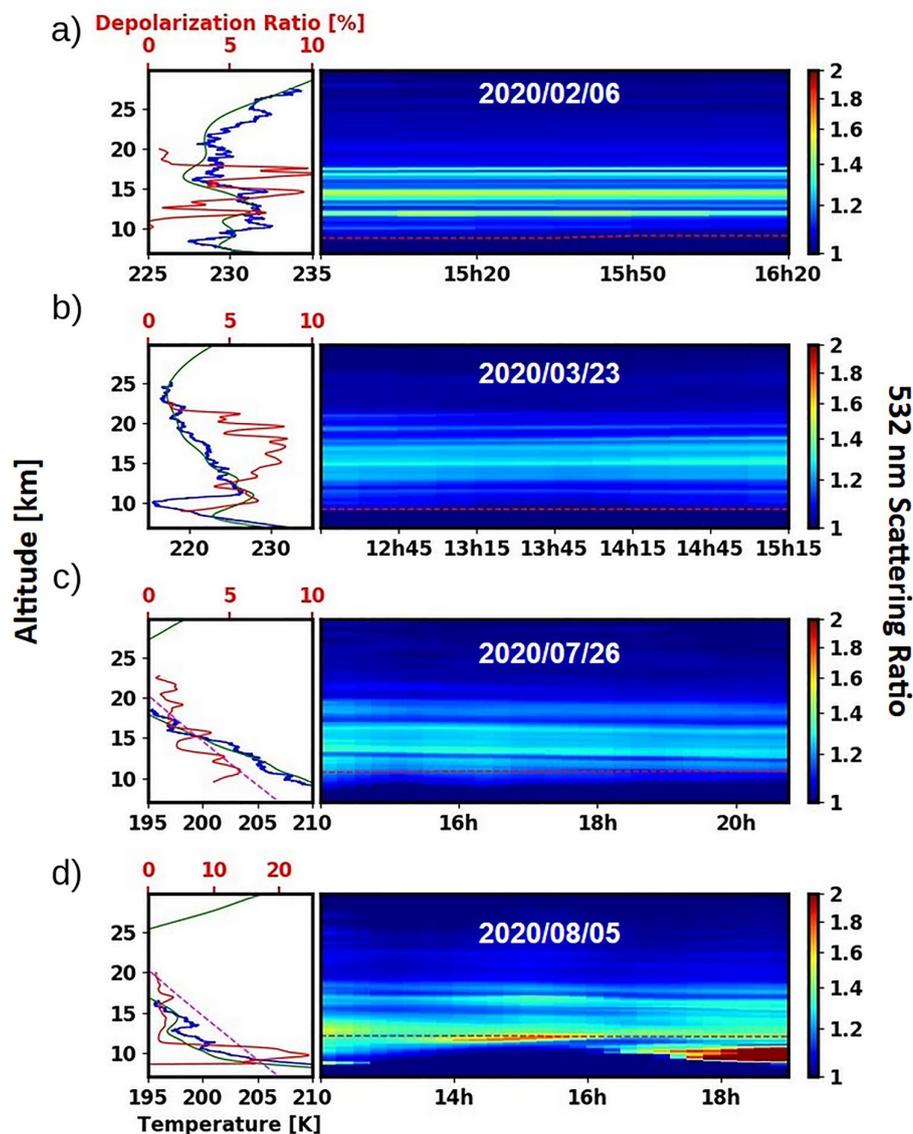


Figure 7. Lidar curtains 532 nm backscatter ratio derived from measurements conducted at Dumont D'Urville (DDU) on 2020/06/02 (a), 2020/03/23 (b), 2020/07/26 (c) and 2020/08/05 (d). The dashed red line indicates the location of the tropopause. On the left, depolarization ratio profiles averaged on the daily sessions are presented (red lines). Temperature profiles from radiosondes launched at DDU as well as from ERA5 reanalysis are shown in blue and green lines respectively. T_{NAT} temperature threshold is shown in purple dashed line.

though below T_{NAT} , illustrate again the difficulty of sorting out PSC and aerosol layers and prevent us from drawing clear conclusions.

The separation between aerosol and PSC would require advanced analysis and accurate speciation between carbon and sulfur out of reach of the data presented in the current paper, especially considering the possible interaction between carbonaceous aerosols and different PSC types do not seem to have been investigated up to now. The scientific question about any impact on PSC microphysics from aerosol presence in the medium still appears relevant and we consider it to be one of the highlights of this paper.

In 2020, the first PSC is reported on 06/23, starting point of the PSC season. The length of the PSC season, which is correlated to temperature and PSC field persistence, is a strong indicator of stratospheric ozone depletion.

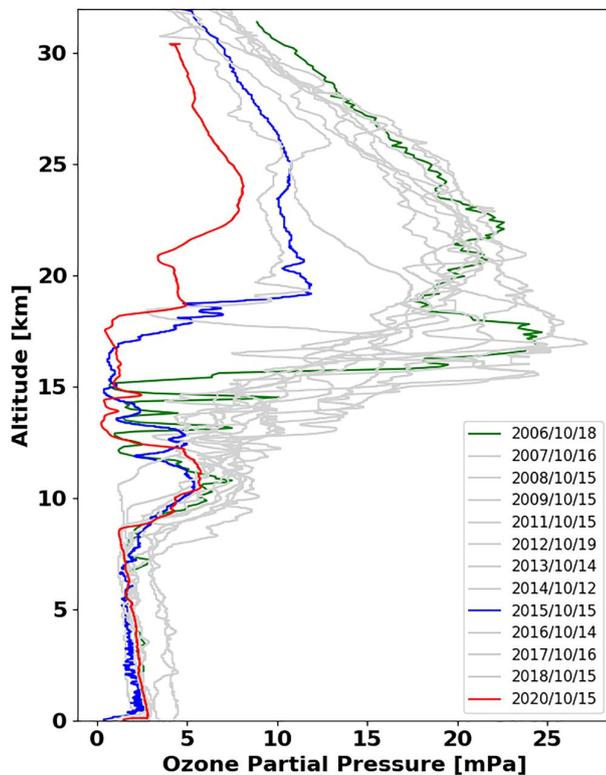


Figure 8. Ozone partial pressure (mPa) measurements from ozone sondes launched at Dumont dUrville in mid-October from 2006 to 2020. Profiles corresponding to 2006, 2015, and 2020 are highlighted, respectively, in green, blue, and red.

PSC fields are observed throughout the wintertime with a final observation in early September. Despite a strong yearly variability, this duration of more than 2 months of PSC presence is in the average of the past decade at DDU. However, ozone measurements from ozone sondes launched at DDU in mid-October from 2006 to 2020 show a significant ozone depletion in 2020 only comparable to the one of 2015. Ozone concentration profiles are shown in Figure 8. In 2015, important aerosol layers coming from the Calbuco eruption were also detected at DDU (data on the NDACC online repository). For the record, the reference 2006 critical ozone depletion profile is also featured in Figure 8. The pattern and vertical range of the depletion still separate it from those observed in 2015 and 2020. This anomalous ozone depletion in mid-October at DDU is in agreement with the findings of Yu et al. (2021) who modeled the impact of the stratospheric smoke injection of the Black Summer event on ozone. Finally, stratospheric ozone depletion is kinetically fast regarding PSC persistence so any aerosol impact would more likely be indirectly related to easier PSC nucleation, but again, these are just preliminary statements (Tritscher et al., 2021).

While the PSC season complicates the tracking of the aerosol plumes, during the Fall season we acquired a significant amount of data to conclude on the optical properties of the smoke aerosols that were transported above the DDU station. From the lidar SR profiles, the aerosol layers appear isolated in Figure 9. Figure 9a shows the SR values of these layers as a function of the day of year (doy) in 2020 and of the depolarization ratio. The doy is used because studying the Black Summer 2019–2020, it reflects the number of days after the main pyroCb events on New Year's eve (Khaykin et al., 2020). In Figure 9b, the SR values of the aerosol layers are plotted against their respective altitude, the months are color-coded.

In Figures 9a and 9b, the time evolution of the optical properties can be followed, as the SR values of the aerosols decrease (from around 1.9 to 1.2) as well as the depolarization ratio values (from 12% to 6%). Our first measurements of these aerosols, ~19 days after the injection, had a SR of 1.9 and a depolarization ratio of 12%. In early June, before the beginning of winter,

the aerosol layers showed an average SR of approximately 1.2 and a depolarization ratio around 6.8%. Figure 9b shows the time evolution of the aerosol layer altitudes. The first aerosol layer is detected at 13.5 km. After that, the aerosol layers spread in altitude in February and March and finally converged between 12 and 15 km during May and June.

It is worth noting that the 532 nm SR values observed throughout the considered period are actually low and comparable to small and moderate volcanic plume values especially after weeks of transport (below around 1.5 – Bègue et al., 2017; Khaykin et al., 2018). Still, the Antarctic stratosphere is actually outside any volcanic influence at this time and the DDU position is too far from anthropogenic pollution sources. In the light of the increasing frequency of PyroCb events, it is of interest to compare our results for this particular event with the literature. Table 1 gathers the optical properties of stratospheric smoke plumes reported in recent years. Four different events are listed: the 1998 wildfires in the Northwest Territories, Canada (Fromm et al., 2005), Black Saturday 2009 in Australia (Jumelet et al., 2020), British Columbia wildfires of 2017 (Baars et al., 2019; Hu et al., 2019; Khaykin et al., 2018) and finally the focus of our present study, Black Summer 2020 (Ohneiser et al., 2020).

From Table 1, the variability of SR and backscatter coefficient (β_{aer}) values is high, which could be somewhat expected as there are several impactful variables: the amount of material uplifted during the event, duration of transport and distance between injection and measurement points, and lidar time integration as well as different signal processing chains. Overall, Table 1 still confirms that our values acquired at high latitudes are smaller than values at mid-latitudes, even if within the range of other measurements. The very high SR value reported in Khaykin et al. (2018) is also stated to be uncommon. Conversion from backscatter coefficient to scattering

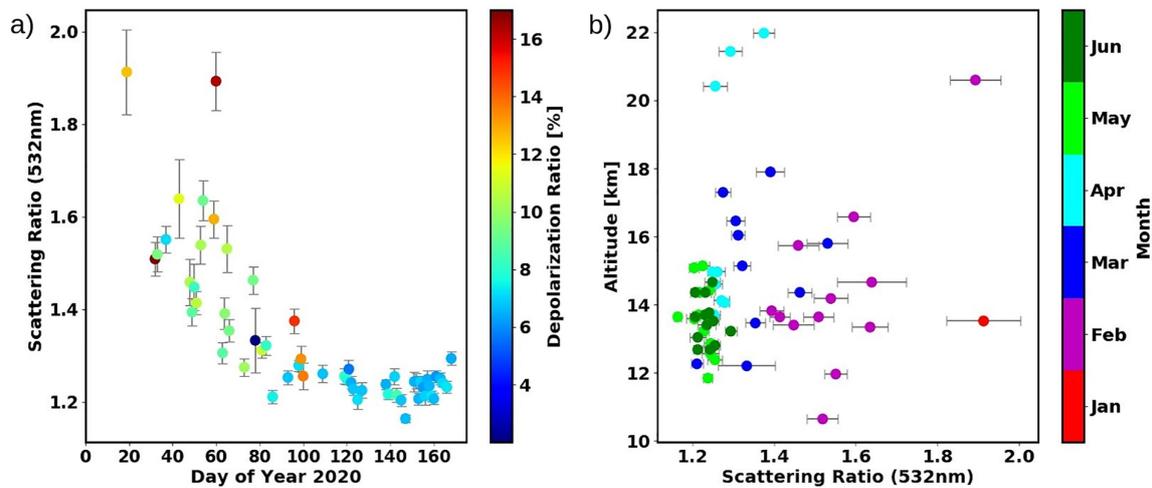


Figure 9. (a) Scatter plot of the identified aerosol layers from January–June 2020 plotted as the scattering ratio versus the day of year (doy) in 2020. The color represents the particulate depolarization ratio, in percentage. (b) Scatter plot of the scattering ratio of each aerosol layer in 2020 plotted as a function of altitude. The color represents the months of 2020. SR uncertainties are calculated from backscatter coefficient errors as a function of lidar data time integration and background sky conditions, considering other error uncertainties constant.

coefficient is not made in Table 1 because of the strong impact of the molecular scattering and the requirement of exact temperature and pressure profiles in each case. Overall, the comparison of our measurements with the literature highlights the duration of the aerosol observations in our study. To our knowledge, it is the first time that a smoke-originated aerosol load is sounded for such a long time period from a single ground-based instrument at high latitudes. There are two main reasons for that: first the pyroCb injections are very impactful (Kablick et al., 2020; Khaykin et al., 2020) and therefore the aerosol load is large enough to be consistently transported toward Antarctica (Figures 2 and 4), and second, once at high latitudes, the round air mass circulation around the pole traps the particles (see Annex 1 for example), which is not the case at lower latitudes, allowing us to sound the aerosol layers for a long period of time.

Table 1
Optical Properties of Stratospheric Smoke Particles From the Literature

	Event	Age (days)	$\beta_{\text{aer}} \times 10^{-3} \text{ km}^{-1} \text{ sr}^{-1}$	SR	$\delta_{\text{aer}} (\%)$	LR (sr)	Site
Fromm et al. (2005)	Canada 1998	19	—	1.85	—	—	Sondrestromfjord, Greenland
Hu et al. (2019)	BC 2017	12	4	—	20	54	Lille, France
Hu et al. (2019)	BC 2017	16	2.2	—	—	58	Palaiseau, France
Khaykin et al. (2018)	BC 2017	17	—	8	—	—	OHP, France
Baars et al. (2019)	BC 2017	28	0.075	—	16	65	Limassol, Cyprus
Jumelet et al. (2020)	Austr. 2009	22	—	1.4	—	—	DDU, Adélie Land
Jumelet et al. (2020)	Austr. 2009	24	—	1.55	—	—	DDU, Adélie Land
Ohneiser et al. (2020)	Austr. 2020	9	1.4	—	15	76	Punta Arenas, Chile
Tencé 2021	Austr. 2020	19	0.25	1.91	12.6	87	DDU, Adélie Land
Tencé 2021	Austr. 2020	32	0.135	1.51	17	73	DDU, Adélie Land
Tencé 2021	Austr. 2020	120	0.057	1.25	7	—	DDU, Adélie Land

Note. BC 2017 refers to British Columbia wildfires of 2017, Austr. 2009 refers to 2009 Black Saturday. Age is time elapsed from the event. β_{aer} is the aerosol backscatter coefficient, in $\text{km}^{-1} \text{sr}^{-1}$. δ_{aer} is the aerosol depolarization ratio and LR is the lidar ratio.

5. Conclusion

The Australian 2019–2020 fire season is exceptional both in duration and extent with numerous pyroCb events reported to inject an unprecedented amount of combustion aerosols into the southern hemispheric stratosphere. In this paper, we characterize the patches of smoke that reached the Antarctic region using a combination of satellite measurements from OMI, OMPS, and MLS and a unique ground-based lidar measurement record covering the entire lifetime of Australian wildfire smoke in the Antarctic stratosphere. Starting mid-January, throughout the PSC season and up to the latest measurements in October, the lidar located at the French Antarctic station DDU monitored a persistent stratospheric aerosol layer with optical properties clearly distinct from that of the background sulphate aerosol signatures. The combination of spaceborne mesoscale UV aerosol index (OMI), visible extinction (OMPS), and backward trajectory modeling confirm these particles originate from the Australian PyroCb events.

The reported measurements are a valuable contribution to the characterization of the optical properties of aged smoke particles while being, as far as we are aware of, the longest observed smoke aerosol time series recorded at stratospheric altitudes. We point out the persistence of smoke aerosols in the southern high latitude stratosphere following the mid-latitude wildfire events, which is already acknowledged for volcanic eruptions. Further investigations are needed to finely resolve speciation between sulfated and carbonaceous aerosols or between aerosol layers.

Therefore, it is out of the scope of this paper to investigate deeper into microphysical interactions between different aerosol types and PSC nucleation. For the record and to support further studies, the 2020 stratospheric ozone depletion season is above the decade's average at DDU, and comparable to 2015, a year featuring a volcanic aerosol detection recorded at DDU.

While satellite measurements are mandatory to complement statements on the aerosol nature and origin, the associated uncertainties are still high enough so that we think only ground-based detection can provide more quantitative insight into the properties of the particles, especially at high latitudes where data availability from various spaceborne instruments have been poorly evaluated and where in-situ campaigns featuring particle counters or balloon-borne sondes remain rare. Keeping up with ground-based facilities and monitoring stations at high latitudes remains highly valuable as the optical properties of thin filamentary smoke layers are often close to the satellite sensor sensitivity which can make them barely visible or harder to investigate. A complementary array of spectral channels to derive microphysical parameters at very high time and vertical resolution of the lidar instrument remain for us the key asset in the study of stratospheric aerosols.

Besides, and in the overall frame of a warmer climate, the prerequisites to major wildfire events such as the Australian Black Summer will be more frequently reached (Hennessy, 2006; Lucas et al., 2007) and this further strengthens the scientific interest in investigations on the global scale impact of smoke aerosols, especially at high latitudes where the stratospheric aerosols will mostly remain confined above Antarctica. The subsequent sedimentation process of the particles could also lead to some degree of snow or ice sheets albedo alteration. Considering larger time scales, such processes may have had past climatic impacts and be a factor to help explain a faster than predicted evolution of ice sheets melting. The present paper highlights the processes involving fine aerosol plumes and transport to high latitudes that are not properly modeled in climate models, being either on the subgrid scale or not even parametrized. An adequate inclusion of these processes could lead to significant local atmospheric or even surface impacts considering the larger scale of the related events.

Data Availability Statement

The lidar instrument is part of the NDACC international network and data are publicly available online at the NDACC/NOAA data archive (<ftp://ftp.cpc.ncep.noaa.gov/ndacc/station/dumont/ames/>), as well as on the AERIS database (<http://cds-espri.ipsl.fr/>).

Acknowledgments

Operations on the Dumont d'Urville station are supported by the French polar institute (Institut polaire français Paul-Emile Victor), science project 209. The authors gratefully acknowledge the NOAA Air Resources Laboratory (ARL) for the provision of the HYSPLIT transport and dispersion model and/or READY website (<https://www.ready.noaa.gov>) used in this publication.

References

Achtert, P., & Tesche, M. (2014). Assessing lidar-based classification schemes for polar stratospheric clouds based on 16 years of measurements at esrange, Sweden. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 119(3), 1386–1405. <https://doi.org/10.1002/2013JD020355>

Adams, M. A., Shadmanroodposhti, M., & Neumann, M. (2020). Causes and consequences of eastern Australia's 2019–20 season of mega-fires: A broader perspective. *Global Change Biology*, 26(7), 3756–3758. <https://doi.org/10.1111/gcb.15125>

Ansmann, A., Wandinger, U., Riebesell, M., Weitkamp, C., & Michaelis, W. (1992). Independent measurement of extinction and backscatter profiles in cirrus clouds by using a combined Raman elastic-backscatter lidar. *Appl. Opt.*, 31, 7113–7131. <https://doi.org/10.1364/AO.31.007113>

Baars, H., Ansmann, A., Ohneiser, K., Haarig, M., Engelmann, R., Althausen, D., & Pappalardo, G. (2019). The unprecedented 2017–2018 stratospheric smoke event: Decay phase and aerosol properties observed with the earlinet. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(23), 15183–15198. <https://doi.org/10.5194/acp-19-15183-2019>

Bégué, N., Vignelles, D., Berthet, G., Portafaix, T., Payen, G., Jégou, F., et al. (2017). Long-range transport of stratospheric aerosols in the southern hemisphere following the 2015 calbuco eruption. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(24), 15019–15036. <https://doi.org/10.5194/acp-17-15019-2017>

Behrendt, A., & Nakamura, T. (2002). Calculation of the calibration constant of polarization lidar and its dependency on atmospheric temperature. *Opt. Express*, 10. <https://doi.org/10.1364/OE.10.000805>

Borchers Arriagada, N., Palmer, A., Bowman, D. M., Morgan, G., Jalaludin, B., & Johnston, F. (2020). Unprecedented smoke-related health burden associated with the 2019–20 bushfires in eastern Australia. *Medical Journal of Australia*, 17(24), 15019–15036. <https://doi.org/10.5694/mja2.50545>

Cai, W., Cowan, T., & Raupach, M. (2009). Positive Indian Ocean dipole events precondition southeast Australia bushfires. *Geophysical Research Letters*, 36, L19710. <https://doi.org/10.1029/2009GL039902>

Charlson, R., Schwartz, S., Hales, J., Cess, R., Coakley, J., Hansen, J., & Hofmann, D. (1992). Climate forcing by anthropogenic aerosols. *Science (New York, N.Y.)*, 255, 423–430. <https://doi.org/10.1126/science.255.5043.423>

Chazette, P., David, C., Lefrère, J., Godin, S., Pelon, J., & Mégie, G. (1995). Comparative lidar study of the optical, geometrical, and dynamical properties of stratospheric post-volcanic aerosols, following the eruptions of El Chichon and Mount Pinatubo. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 100. <https://doi.org/10.1029/95JD02268>

Chen, Z., Bhartia, P. K., Loughman, R., Colarco, P., & DeLand, M. (2018). Improvement of stratospheric aerosol extinction retrieval from omps/lp using a new aerosol model. *Atmospheric Measurement Techniques*, 11(12), 6495–6509. <https://doi.org/10.5194/amt-11-6495-2018>

Cheney, N. (1976). Bushfire disasters in Australia, 1945–1975. *Australian Forestry*, 39(4), 245–268. <https://doi.org/10.1080/00049158.1976.10675654>

Clarke, H., Lucas, C., & Smith, P. (2013). Changes in Australian fire weather between 1973 and 2010. *International Journal of Climatology*, 33(4), 931–944. <https://doi.org/10.1002/joc.3480>

Dahlkötter, F., Gysel, M., Sauer, D., Minikin, A., Baumann, R., Seifert, P., et al. (2014). The pagami creek smoke plume after long-range transport to the upper troposphere over Europe - Aerosol properties and black carbon mixing state. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(12), 6111–6137. <https://doi.org/10.5194/acp-14-6111-2014>

Davey, S., & Sarre, A. (2020). Editorial: The 2019/20 Black Summer bushfires. *Australian Forestry*, 83(2), 47–51. <https://doi.org/10.1080/00049158.2020.1769899>

David-Beausire, C., Bekki, S., Godin-Beekmann, S., Mégie, G., & Chipperfield, M. (1998). Polar stratospheric clouds climatology over Dumont d'Urville between 1989 and 1993 and the influence of volcanic aerosols on their formation. *Journal of Geophysical Research*, 1032, 22163–22180. <https://doi.org/10.1029/98JD01692>

David, C., Haefele, A., Keckhut, P., Marchand, M., Jumelet, J., Leblanc, T., et al. (2012). Evaluation of stratospheric ozone, temperature, and aerosol profiles from the LOANA lidar in Antarctica. *Polar Science*, 6, 209–225. <https://doi.org/10.1016/j.polar.2012.07.001>

Dowdy, A., Fromm, M., & McCarthy, N. (2017). Pyrocumulonimbus lightning and fire ignition on black saturday in southeast Australia. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 122(14), 7342–7354. <https://doi.org/10.1002/2017JD026577>

Dowdy, A., Ye, H., Pepler, A., Thatcher, M., Osbrough, S., Evans, J., et al. (2019). Future changes in extreme weather and pyroconvection risk factors for Australian wildfires. *Scientific Reports*, 9, 10073. <https://doi.org/10.1038/s41598-019-46362-x>

Fernald, F. G. (1984). Analysis of atmospheric lidar observations: Some comments. *Applied Optics*, 23(5), 652–653. <https://doi.org/10.1364/AO.23.000652>

Fiebig, M., Lunder, C. R., & Stohl, A. (2009). Tracing biomass burning aerosol from south America to troll research station, Antarctica. *Geophysical Research Letters*, 36(14), L14815. <https://doi.org/10.1029/2009GL038531>

Flynn, L., Long, C., Wu, X., Evans, R., Beck, C. T., Petropavlovskikh, I., & Seftor, C. (2014). Performance of the ozone mapping and profiler suite (omps) products. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 119(10), 6181–6195. <https://doi.org/10.1002/2013JD020467>

Fromm, M., Bevilacqua, R., Servranckx, R., Rosen, J., Thayer, J. P., Herman, J., & Larko, D. (2005). Pyro-cumulonimbus injection of smoke to the stratosphere: Observations and impact of a super blowup in northwestern Canada on 3–4 August 1998. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 110(D8), D08205. <https://doi.org/10.1029/2004JD005350>

Fromm, M., Lindsey, D., Servranckx, R., Yue, G., Trickl, T., Sica, R., et al. (2010). The untold story of pyrocumulonimbus. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 91(9), 1193–1210. <https://doi.org/10.1175/2010BAMS3004.1>

Fromm, M., Tupper, A., Rosenfeld, D., Servranckx, R., & McRae, R. (2006). Violent pyro-convective storm devastates Australia's capital and pollutes the stratosphere. *Geophysical Research Letters*, 33, L05815. <https://doi.org/10.1029/2005GL025161>

Hennessy, K. (2006). Climate change impacts on fire-weather in south-east Australia. In *The joint AFAC/IFCAA bushfire CRC conference: 10-13 August 2006: Melbourne convention centre Australia: Conference proceedings* (pp. 536–546). Bushfire CRC.

Hirsch, E., & Koren, I. (2021). Record-breaking aerosol levels explained by smoke injection into the stratosphere. *Science*, 371, 1269–1274. <https://doi.org/10.1126/science.abe1415>

Hu, Q., Goloub, P., Veselovskii, I., Bravo-Aranda, J.-A., Popovici, I. E., Podvin, T., & Chen, C. (2019). Long-range-transported Canadian smoke plumes in the lower stratosphere over northern France. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(2), 1173–1193. <https://doi.org/10.5194/acp-19-1173-2019>

Jaross, G., Bhartia, P. K., Chen, G., Kowitz, M., Haken, M., Chen, Z., & Kelly, T. (2014). Omeps limb profiler instrument performance assessment. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 119(7), 4399–4412. <https://doi.org/10.1002/2013JD020482>

Jumelet, J., Klekociuk, A. R., Alexander, S. P., Bekki, S., Hauchecorne, A., Vernier, J. P., & Keckhut, P. (2020). Detection of aerosols in Antarctica from long-range transport of the 2009 Australian wildfires. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 125(23), e2020JD032542. <https://doi.org/10.1029/2020JD032542>

- Kablick, G. III, Allen, D., Fromm, M., & Nedoluha, G. (2020). Australian pyrocb smoke generates synoptic-scale stratospheric anticyclones. *Geophysical Research Letters*, *47*(13), e2020GL088101. <https://doi.org/10.1029/2020GL088101>
- Khaykin, S., Godin-Beekmann, S., Hauchecorne, A., Pelon, J., Ravetta, F., & Keckhut, P. (2018). Stratospheric smoke with unprecedentedly high backscatter observed by lidars above southern France. *Geophysical Research Letters*, *45*(3), 1639–1646. <https://doi.org/10.1002/2017GL076763>
- Khaykin, S., Legras, B., Bucci, S., Sellitto, P., Isaksen, I., Tencé, F., et al. (2020). The 2019/20 Australian wildfires generated a persistent smoke-charged vortex rising up to 35km altitude. *Communications Earth & Environment*, *1*(1), 22. <https://doi.org/10.1038/s43247-020-00022-5>
- Klett, J. D. (1981). Stable analytical inversion solution for processing lidar returns. *Applied Optics*, *20*(2), 211–220. <https://doi.org/10.1364/AO.20.000211>
- Klett, J. D. (1985). Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios. *Applied Optics*, *24*(11), 1638–1643. <https://doi.org/10.1364/AO.24.001638>
- Kloss, C., Berthet, G., Sellitto, P., Ploeger, F., Taha, G., Tidiga, M., et al. (2021). Stratospheric aerosol layer perturbation caused by the 2019 Raikoke and Ulawun eruptions and their radiative forcing. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *21*, 535–560. <https://doi.org/10.5194/acp-21-535-2021>
- Kremser, S., Thomason, L. W., von Hobe, M., Hermann, M., Deshler, T., Timmreck, C., & Meland, B. (2016). Stratospheric aerosol: Observations, processes, and impact on climate. *Reviews of Geophysics*, *54*(2), 278–335. <https://doi.org/10.1002/2015RG000511>
- Levelt, P., Oord, G., Dobber, M., Mälkki, A., Visser, H., Vries, J., et al. (2006). The ozone monitoring instrument. *IEEE T. Geoscience and Remote Sensing*, *44*, 1093–1101. <https://doi.org/10.1109/TGRS.2006.872333>
- Lim, E., Hendon, H., Boschat, G., Hudson, D., Thompson, D. W., Dowdy, A., & Arblaster, J. (2019). Australian hot and dry extremes induced by weakenings of the stratospheric polar vortex. *Nature Geoscience*, *12*, 896–901. <https://doi.org/10.1038/s41561-019-0456-x>
- Livesey, N. J., Read, W. G., Lambert, A., Cofield, R. E., Cuddy, D. T., Froidevaux, L., et al. (2007). *Eos mls version 2.2 level 2 data quality and description document, technical report*. Jet Propulsion Laboratory D-33509.
- Lucas, C., Hennessy, K. J., Mills, G. A., & Bathols, J. M. (2007). *Bushfire weather in southeast Australia recent trends and projected climate change impacts ; consultancy report prepared for the climate institute of Australia*. Bushfire Cooperative Research Centre. Australian Bureau of Meteorology and CSIRO Marine and Atmospheric Research. <https://doi.org/10.25919/5e31c82ee0a4c>
- Martinsson, B., Friberg, J., Sandvik, O., Hermann, M., van Velthoven, P., & Zahn, A. (2019). Formation and composition of the UTLS aerosol. *NPJ Climate and Atmospheric Science*, *2*, 40. <https://doi.org/10.1038/s41612-019-0097-1>
- McArthur, A. (1967). *Causes and consequences of eastern Australia's 2019–20 season of mega-fires: A broader perspective*. Forest Research Institute, Forestry and Timber Bureau, Leaflet No. 107.
- McRae, R., Sharples, J., & Fromm, M. (2015). Linking local wildfire dynamics to pyrocb development. *Natural Hazards and Earth System Sciences*, *15*(3), 417–428. <https://doi.org/10.5194/nhess-15-417-2015>
- Nolan, R., Boer, M., Collins, L., Resco de Dios, V., Clarke, H., Jenkins, M., et al. (2020). Causes and consequences of eastern Australia's 2019–20 season of mega-fires. *Global Change Biology*, *26*(3), 1039–1041. <https://doi.org/10.1111/gcb.14987>
- Ohneiser, K., Ansmann, A., Baars, H., Seifert, P., Barja, B., Jimenez, C., et al. (2020). Smoke of extreme Australian bushfires observed in the stratosphere over Punta Arenas, Chile, in January 2020: Optical thickness, lidar ratios, and depolarization ratios at 355 and 532 nm. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, *20*(13), 8003–8015. <https://doi.org/10.5194/acp-2020-96>
- Penner, J., Andreae, M., & Annegarn, M. (2001). Aerosol, their direct and indirect effects. In: *Climate change 2001: The scientific basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment report of the Intergovernmental panel on climate change*, 5, 291–336.
- Peterson, D., Fromm, M., McRae, R. H. D., Campbell, J. R., Hyer, E. J., Taha, G., et al. (2021). Australia's black summer pyrocumulonimbus super outbreak reveals potential for increasingly extreme stratospheric smoke events. *NPJ Climate and Atmospheric Science*, *4*(38), 2235–2255. <https://doi.org/10.1038/s41612-021-00192-9>
- Peterson, D., Hyer, E., Campbell, J., Solbrig, J., & Fromm, M. (2017). A conceptual model for development of intense pyrocumulonimbus in western North America. *Monthly Weather Review*, *145*(6), 2235–2255. <https://doi.org/10.1175/MWR-D-16-0232.1>
- Rault, D., & Loughman, R. P. (2013). The omps limb profiler environmental data record algorithm theoretical basis document and expected performance. *Geoscience and Remote Sensing, IEEE Transactions on*, *51*, 2505–2527. <https://doi.org/10.1109/TGRS.2012.2213093>
- Rolph, G., Stein, A., & Stunder, B. (2017). Real-time environmental applications and display system: Ready. *Environmental Modelling & Software*, *95*, 210–228. <https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2017.06.025>
- Safieddine, S., Bouillon, M., Paracho, A., Jumelet, J., Tencé, F., Pazmino, A., et al. (2020). Antarctic ozone enhancement during the 2019 sudden stratospheric warming event. *Geophysical Research Letters*, *47*(14), e2020GL087810. <https://doi.org/10.1029/2020GL087810>
- Sharples, J., Cary, G., Fox-Hughes, P., Mooney, S., Evans, J., Fletcher, M., et al. (2016). Natural hazards in Australia: Extreme bushfire. *Climatic Change*, *139*, 85–99. <https://doi.org/10.1007/s10584-016-1811-1>
- Stein, A., Draxler, R., Rolph, G., Stunder, B., Cohen, M., & Ngan, F. (2016). NOAA's hysplit atmospheric transport and dispersion modeling system. *Bulletin of the American Meteorological Society*, *96*(12), 2059–2077. <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-14-00110.1>
- Torres, O., Tanskanen, A., Veihelmann, B., Ahn, C., Braak, R., Bhartia, P. K., & Levelt, P. (2007). Aerosols and surface UV products from ozone monitoring instrument observations: An overview. *Journal of Geophysical Research*, *112*(D24), D24S47. <https://doi.org/10.1029/2007JD008809>
- Tory, K., Thurston, W., & Kepert, J. (2018). Thermodynamics of pyrocumululus: A conceptual study. *Monthly Weather Review*, *146*(8), 2579–2598. <https://doi.org/10.1175/MWR-D-17-0377.1>
- Tritscher, I., Pitts, M. C., Poole, L. R., Alexander, S. P., Cairo, F., Chipperfield, M. P., et al. (2021). Polar stratospheric clouds satellite observations, processes, and role in ozone depletion. *Reviews of Geophysics*, *59*(2), e2020RG000702. <https://doi.org/10.1029/2020RG000702>
- Waters, J. W., Froidevaux, L., Harwood, R. S., Jarnot, R. F., Pickett, H. M., Read, W. G., & Walch, M. J. (2006). The earth observing system microwave limb sounder (EOS MLS) on the aura satellite. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, *44*(5), 1075–1092. <https://doi.org/10.1109/TGRS.2006.873771>
- Yu, P., Davis, S. M., Toon, O. B., Portmann, R. W., Bardeen, C. G., Barnes, J. E., & Rosenlof, K. H. (2021). Persistent stratospheric warming due to 2019–2020 Australian wildfire smoke. *Geophysical Research Letters*, *48*(7), e2021GL092609. <https://doi.org/10.1029/2021GL092609>

Bibliographie

- J. P. D. Abbatt and M. J. Molina. The heterogeneous reaction of $\text{HOCl} + \text{HCl} \rightarrow \text{Cl}_2 + \text{H}_2\text{O}$ on ice and nitric acid trihydrate : Reaction probabilities and stratospheric implications. *Geophysical Research Letters*, 19(5) :461–464, 1992. doi : <https://doi.org/10.1029/92GL00373>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/92GL00373>.
- P. Achtert and M. Tesche. Assessing lidar-based classification schemes for polar stratospheric clouds based on 16 years of measurements at esrange, sweden. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 119(3) :1386–1405, 2014. doi : <https://doi.org/10.1002/2013JD020355>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/2013JD020355>.
- P. Achtert, M. Karlsson Andersson, F. Khosrawi, and J. Gumbel. On the linkage between tropospheric and polar stratospheric clouds in the arctic as observed by space-borne lidar. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(8) :3791–3798, 2012. doi : 10.5194/acp-12-3791-2012. URL <https://acp.copernicus.org/articles/12/3791/2012/>.
- M. A. Adams, M. Shadmanroodposhti, and M. Neumann. Causes and consequences of eastern australia's 2019–20 season of mega-fires : A broader perspective. *Global Change Biology*, 26(7) :3756–3758, 2020. doi : 10.1111/gcb.15125. URL <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1111/gcb.15125>.
- L. Adhikari, Z. Wang, and D. Liu. Microphysical properties of antarctic polar stratospheric clouds and their dependence on tropospheric cloud systems. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 115(D4), 2010. doi : <https://doi.org/10.1029/2009JD012125>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2009JD012125>.
- A. Adriani, P. Massoli, G. Di Donfrancesco, F. Cairo, M. L. Moriconi, and M. Snels. Climatology of polar stratospheric clouds based on lidar observations from 1993 to 2001 over mcmurdo station, antarctica. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 109(D24), 2004. doi : <https://doi.org/10.1029/2004JD004800>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2004JD004800>.

- A. E. Aloyan, A. N. Yermakov, and V. O. Arutyunyan. Modeling the formation of polar stratospheric clouds with allowance for kinetic and heterogeneous processes. *Izvestiya Atmospheric and Oceanic Physics*, 51(3) :241–250, May 2015. doi : 10.1134/S0001433815030020.
- A. Ansmann, U. Wandinger, M. Riebesell, C. Weitkamp, and W. Michaelis. Independent measurement of extinction and backscatter profiles in cirrus clouds by using a combined raman elastic-backscatter lidar. *Appl. Opt.*, 31(33) :7113–7131, Nov 1992. doi : 10.1364/AO.31.007113. URL <http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-31-33-7113>.
- A. Ansmann, K. Ohneiser, A. Chudnovsky, D. A. Knopf, E. W. Eloranta, D. Villanueva, P. Seifert, M. Radenz, B. Barja, F. Zamorano, C. Jimenez, R. Engelmann, H. Baars, H. Griesche, J. Hofer, D. Althausen, and U. Wandinger. Ozone depletion in the arctic and antarctic stratosphere induced by wildfire smoke. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 22(17) :11701–11726, 2022. doi : 10.5194/acp-22-11701-2022. URL <https://acp.copernicus.org/articles/22/11701/2022/>.
- H. Baars, A. Ansmann, K. Ohneiser, M. Haarig, R. Engelmann, D. Althausen, I. Hanssen, M. Gausa, A. Pietruczuk, A. Szkop, I. S. Stachlewska, D. Wang, J. Reichardt, A. Skupin, I. Mattis, T. Trickl, H. Vogelmann, F. Navas-Guzmán, A. Haeferle, K. Acheson, A. A. Ruth, B. Tatarov, D. Müller, Q. Hu, T. Podvin, P. Goloub, I. Veselovskii, C. Pietras, M. Haeffelin, P. Fréville, M. Sicard, A. Comerón, A. J. Fernández García, F. Molero Menéndez, C. Córdoba-Jabonero, J. L. Guerrero-Rascado, L. Alados-Arboledas, D. Bortoli, M. J. Costa, D. Dionisi, G. L. Liberti, X. Wang, A. Sannino, N. Papagiannopoulos, A. Boselli, L. Mona, G. D'Amico, S. Romano, M. R. Perrone, L. Belegante, D. Nicolae, I. Grigorov, A. Gialitaki, V. Amiridis, O. Soupiona, A. Papayannis, R.-E. Mamouri, A. Nisantzi, B. Heese, J. Hofer, Y. Y. Schechner, U. Wandinger, and G. Pappalardo. The unprecedented 2017–2018 stratospheric smoke event : decay phase and aerosol properties observed with the earlinet. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(23) :15183–15198, 2019. doi : 10.5194/acp-19-15183-2019. URL <https://acp.copernicus.org/articles/19/15183/2019/>.
- C. Baird, M. Cann, J. Joseleau, and R. Perraud. *Chimie de l'environnement*. De Boeck supérieur, 2016. ISBN 9782804192174. URL <https://books.google.fr/books?id=PGcEDgAAQBAJ>.
- W. T. Ball, G. Chiodo, M. Abalos, J. Alsing, and A. Stenke. Inconsistencies between chemistry–climate models and observed lower stratospheric ozone trends since 1998. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20(16) :9737–9752, 2020. doi : 10.5194/acp-20-9737-2020. URL <https://acp.copernicus.org/articles/20/9737/2020/>.
- S. B. Barone, M. A. Zondlo, and M. A. Tolbert. A kinetic and product study of the hydrolysis of ClONO₂ on type Ia polar stratospheric cloud materials at 185 K. *The Journal of Physical Chemistry A*, 101(46) :8643–8652, 1997. doi : 10.1021/jp971107k. URL <https://doi.org/10.1021/jp971107k>.

- N. Bègue, D. Vignelles, G. Berthet, T. Portafaix, G. Payen, F. Jégou, H. Benchérif, J. Jumelet, J.-P. Vernier, T. Lurton, J.-B. Renard, L. Clarisse, V. Duverger, F. Posny, J.-M. Metzger, and S. Godin-Beekmann. Long-range transport of stratospheric aerosols in the southern hemisphere following the 2015 calbuco eruption. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(24) :15019–15036, 2017. doi : 10.5194/acp-17-15019-2017. URL <https://acp.copernicus.org/articles/17/15019/2017/>.
- A. Behrendt and T. Nakamura. Calculation of the calibration constant of polarization lidar and its dependency on atmospheric temperature. *Opt. Express*, 10(16) :805–817, Aug 2002. doi : 10.1364/OE.10.000805. URL <http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-10-16-805>.
- L. Bi, P. Yang, G. W. Kattawar, and M. I. Mishchenko. Efficient implementation of the invariant imbedding t-matrix method and the separation of variables method applied to large nonspherical inhomogeneous particles. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 116 :169–183, 2013. ISSN 0022-4073. doi : <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2012.11.014>. URL <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0022407312005201>.
- U. M. Biermann, T. Presper, T. Koop, J. Mößinger, P. J. Crutzen, and T. Peter. The unsuitability of meteoritic and other nuclei for polar stratospheric cloud freezing. *Geophysical Research Letters*, 23(13) :1693–1696, 1996. doi : <https://doi.org/10.1029/96GL01577>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/96GL01577>.
- U. M. Biermann, J. N. Crowley, T. Huthwelker, G. K. Moortgat, P. J. Crutzen, and T. Peter. Ftir studies on lifetime prolongation of stratospheric ice particles due to nat coating. *Geophysical Research Letters*, 25(21) :3939–3942, 1998. doi : <https://doi.org/10.1029/1998GL900040>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/1998GL900040>.
- U. Blum, K. H. Fricke, K. P. Müller, J. Siebert, and G. Baumgarten. Long-term lidar observations of polar stratospheric clouds at esrange in northern sweden. *Tellus B*, 57(5) :412–422, 2005. doi : <https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2005.00161.x>. URL <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1111/j.1600-0889.2005.00161.x>.
- U. Blum, F. Khosrawi, G. Baumgarten, K. Stebel, R. Müller, and K. H. Fricke. Simultaneous lidar observations of a polar stratospheric cloud on the east and west sides of the scandinavian mountains and microphysical box model simulations. *Annales Geophysicae*, 24(12) :3267–3277, 2006. doi : 10.5194/angeo-24-3267-2006. URL <https://angeo.copernicus.org/articles/24/3267/2006/>.
- A. Bogdan and M. Kulmala. Aerosol silica as a possible candidate for the heterogeneous formation of nitric acid hydrates in the stratosphere. *Geophysical Research Letters*, 26(10) :1433–1436, 1999. doi : <https://doi.org/10.1029/1999GL900254>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/1999GL900254>.

- A. Bogdan, M. J. Molina, M. Kulmala, A. R. MacKenzie, and A. Laaksonen. Study of finely divided aqueous systems as an aid to understanding the formation mechanism of polar stratospheric clouds : Case of hno₃/h₂o and h₂so₄/h₂o systems. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D10), 2003. doi : <https://doi.org/10.1029/2002JD002605>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2002JD002605>.
- H. Bönisch, A. Engel, T. Birner, P. Hoor, D. W. Tarasick, and E. A. Ray. On the structural changes in the Brewer-Dobson circulation after 2000. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(8) :3937–3948, 2011. doi : 10.5194/acp-11-3937-2011. URL <https://acp.copernicus.org/articles/11/3937/2011/>.
- N. Borchers Arriagada, A. Palmer, D. M. Bowman, G. Morgan, B. Jalaludin, and F. Johnston. Unprecedented smoke-related health burden associated with the 2019–20 bushfires in eastern Australia. *Medical Journal of Australia*, n/a (n/a), 2020. doi : 10.5694/mja2.50545. URL <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.5694/mja2.50545>.
- M. Bouillon. *Températures atmosphériques homogènes dérivées des observations satellitaires IASI : restitution, variations spatio-temporelles et événements extrêmes*. PhD thesis, Sorbonne université, 2021.
- M. Bouillon, S. Safieddine, S. Whitburn, L. Clarisse, F. Aires, V. Pellet, O. Lezeaux, N. A. Scott, M. Doutriaux-Boucher, and C. Clerbaux. Time evolution of temperature profiles retrieved from 13 years of infrared atmospheric sounding interferometer (IASI) data using an artificial neural network. *Atmospheric Measurement Techniques*, 15 (6) :1779–1793, 2022. doi : 10.5194/amt-15-1779-2022. URL <https://amt.copernicus.org/articles/15/1779/2022/>.
- E. V. Browell, C. F. Butler, S. Ismail, P. A. Robinette, A. F. Carter, N. S. Higdon, O. B. Toon, M. R. Schoeberl, and A. F. Tuck. Airborne lidar observations in the wintertime Arctic stratosphere : Polar stratospheric clouds. *Geophysical Research Letters*, 17(4) :385–388, 1990. doi : <https://doi.org/10.1029/GL017i004p00385>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/GL017i004p00385>.
- C. Brühl, J. Lelieveld, P. J. Crutzen, and H. Tost. The role of carbonyl sulphide as a source of stratospheric sulphate aerosol and its impact on climate. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(3) :1239–1253, 2012. doi : 10.5194/acp-12-1239-2012. URL <https://acp.copernicus.org/articles/12/1239/2012/>.
- W. Cai, T. Cowan, and M. Raupach. Positive Indian Ocean dipole events precondition Southeast Australia bushfires. *Geophysical Research Letters - GEOPHYS RES LETT*, 36, 10 2009. doi : 10.1029/2009GL039902.
- F. Cairo, A. Adriani, M. Viterbini, G. Di Donfrancesco, V. Mitev, R. Matthey, M. Bastiano, G. Redaelli, R. Dragani, R. Ferretti, V. Rizi, T. Paolucci, L. Bernardini, M. Cacciani, G. Pace, and G. Fiocco. Polar stratospheric clouds observed during the Airborne Polar Experiment–Geophysica Aircraft in Antarctica (APE-GAIA) campaign. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 109(D7), 2004. doi : <https://doi.org/10.1029/2003JD003930>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2003JD003930>.

- S. Carn, L. Clarisse, and A. Prata. Multi-decadal satellite measurements of global volcanic degassing. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 311 :99–134, 2016. ISSN 0377-0273. doi : <https://doi.org/10.1016/j.jvolgeores.2016.01.002>. URL <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0377027316000032>.
- J. L. Carr, A. Horváth, D. L. Wu, and M. D. Friberg. Stereo plume height and motion retrievals for the record-setting hunga tonga-hunga ha'apai eruption of 15 january 2022. *Geophysical Research Letters*, 49(9) :e2022GL098131, 2022. doi : <https://doi.org/10.1029/2022GL098131>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2022GL098131>. e2022GL098131 2022GL098131.
- K. S. Carslaw, B. P. Luo, S. L. Clegg, T. Peter, P. Brimblecombe, and P. J. Crutzen. Stratospheric aerosol growth and hno3 gas phase depletion from coupled hno3 and water uptake by liquid particles. *Geophysical Research Letters*, 21(23) :2479–2482, 1994. doi : <https://doi.org/10.1029/94GL02799>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/94GL02799>.
- K. S. Carslaw, T. Peter, and S. L. Clegg. Modeling the composition of liquid stratospheric aerosols. *Reviews of Geophysics*, 35(2) :125–154, 1997. doi : <https://doi.org/10.1029/97RG00078>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/97RG00078>.
- K. S. Carslaw, M. Wirth, A. Tsias, B. P. Luo, A. Dörnbrack, M. Leutbecher, H. Volkert, W. Renger, J. T. Bacmeister, and T. Peter. Particle microphysics and chemistry in remotely observed mountain polar stratospheric clouds. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 103(D5) :5785–5796, 1998. doi : <https://doi.org/10.1029/97JD03626>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/97JD03626>.
- D. Chand, P. Guyon, P. Artaxo, O. Schmid, G. P. Frank, L. V. Rizzo, O. L. Mayol-Bracero, L. V. Gatti, and M. O. Andreae. Optical and physical properties of aerosols in the boundary layer and free troposphere over the amazon basin during the biomass burning season. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(10) :2911–2925, 2006. doi : [10.5194/acp-6-2911-2006](https://doi.org/10.5194/acp-6-2911-2006). URL <https://acp.copernicus.org/articles/6/2911/2006/>.
- H. Y. A. Chang, T. Koop, L. T. Molina, and M. J. Molina. Phase transitions in emulsified hno3/h2o and hno3/h2so4/h2o solutions. *The Journal of Physical Chemistry A*, 103(15) :2673–2679, 1999. doi : [10.1021/jp9841034](https://doi.org/10.1021/jp9841034). URL <https://doi.org/10.1021/jp9841034>.
- R. Charlson, S. Schwartz, J. Hales, R. Cess, J. Coakley, J. Hansen, and D. Hofmann. Climate forcing by anthropogenic aerosols. *Science (New York, N.Y.)*, 255 :423–30, 02 1992. doi : [10.1126/science.255.5043.423](https://doi.org/10.1126/science.255.5043.423).
- Z. Chen, P. K. Bhartia, R. Loughman, P. Colarco, and M. DeLand. Improvement of stratospheric aerosol extinction retrieval from omps/lp using a new aerosol model. *Atmospheric Measurement Techniques*, 11(12) :6495–6509, 2018. doi : [10.5194/amt-11-6495-2018](https://doi.org/10.5194/amt-11-6495-2018). URL <https://amt.copernicus.org/articles/11/6495/2018/>.

- N. Cheney. Bushfire disasters in australia, 1945–1975. *Australian Forestry*, 39(4) :245–268, 1976. doi : 10.1080/00049158.1976.10675654. URL <https://doi.org/10.1080/00049158.1976.10675654>.
- H. Clarke, C. Lucas, and P. Smith. Changes in australian fire weather between 1973 and 2010. *International Journal of Climatology*, 33(4) :931–944, 2013. doi : 10.1002/joc.3480. URL <https://rmets.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/joc.3480>.
- C. Clerbaux, A. Boynard, L. Clarisse, M. George, J. Hadji-Lazaro, H. Herbin, D. Hurtmans, M. Pommier, A. Razavi, S. Turquety, C. Wespes, and P.-F. Coheur. Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrarediasi/metop sounder. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(16) :6041–6054, 2009. doi : 10.5194/acp-9-6041-2009. URL <https://acp.copernicus.org/articles/9/6041/2009/>.
- P. J. Crutzen. The influence of nitrogen oxides on the atmospheric ozone content. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 96(408) :320–325, 1970. doi : <https://doi.org/10.1002/qj.49709640815>. URL <https://rmets.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/qj.49709640815>.
- F. Dahlkötter, M. Gysel, D. Sauer, A. Minikin, R. Baumann, P. Seifert, A. Ansmann, M. Fromm, C. Voigt, and B. Weinzierl. The pagami creek smoke plume after long-range transport to the upper troposphere over europe - aerosol properties and black carbon mixing state. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(12) :6111–6137, 2014. doi : 10.5194/acp-14-6111-2014. URL <https://acp.copernicus.org/articles/14/6111/2014/>.
- S. Davey and A. Sarre. Editorial : the 2019/20 black summer bushfires. *Australian Forestry*, 83(2) :47–51, 2020. doi : 10.1080/00049158.2020.1769899. URL <https://doi.org/10.1080/00049158.2020.1769899>.
- C. David, P. Keckhut, A. Armetta, J. Jumelet, M. Snels, M. Marchand, and S. Bekki. Radiosonde stratospheric temperatures at dumont d'urville (antarctica) : trends and link with polar stratospheric clouds. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(8) :3813–3825, 2010. doi : 10.5194/acp-10-3813-2010. URL <https://acp.copernicus.org/articles/10/3813/2010/>.
- C. David, A. Haefele, P. Keckhut, M. Marchand, J. Jumelet, T. Leblanc, C. Cenac, C. Laqui, J. Porteneuve, M. Haefelin, Y. Courcoux, M. Snels, M. Viterbini, and M. Quatrevalet. Evaluation of stratospheric ozone, temperature, and aerosol profiles from the loana lidar in antarctica. *Polar Science*, 6(3) :209 – 225, 2012. ISSN 1873-9652. doi : <https://doi.org/10.1016/j.polar.2012.07.001>.
- T. Deshler, M. E. Hervig, D. J. Hofmann, J. M. Rosen, and J. B. Liley. Thirty years of in situ stratospheric aerosol size distribution measurements from laramie, wyoming (41°n), using balloon-borne instruments. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D5), 2003. doi : <https://doi.org/10.1029/2002JD002514>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2002JD002514>.

- S. S. Dhomse, K. M. Emmerson, G. W. Mann, N. Bellouin, K. S. Carslaw, M. P. Chipperfield, R. Hommel, N. L. Abraham, P. Telford, P. Braesicke, M. Dalvi, C. E. Johnson, F. O'Connor, O. Morgenstern, J. A. Pyle, T. Deshler, J. M. Zawodny, and L. W. Thomason. Aerosol microphysics simulations of the mt. pinatubo eruption with the um-ukca composition-climate model. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(20) :11221–11246, 2014. doi : 10.5194/acp-14-11221-2014. URL <https://acp.copernicus.org/articles/14/11221/2014/>.
- S. S. Dhomse, D. Kinnison, M. P. Chipperfield, R. J. Salawitch, I. Cionni, M. I. Hegglin, N. L. Abraham, H. Akiyoshi, A. T. Archibald, E. M. Bednarz, S. Bekki, P. Braesicke, N. Butchart, M. Dameris, M. Deushi, S. Frith, S. C. Hardiman, B. Hassler, L. W. Horowitz, R.-M. Hu, P. Jöckel, B. Josse, O. Kirner, S. Kremser, U. Langematz, J. Lewis, M. Marchand, M. Lin, E. Mancini, V. Marécal, M. Michou, O. Morgenstern, F. M. O'Connor, L. Oman, G. Pitari, D. A. Plummer, J. A. Pyle, L. E. Revell, E. Rozanov, R. Schofield, A. Stenke, K. Stone, K. Sudo, S. Tilmes, D. Vioni, Y. Yamashita, and G. Zeng. Estimates of ozone return dates from chemistry-climate model initiative simulations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(11) :8409–8438, 2018. doi : 10.5194/acp-18-8409-2018. URL <https://acp.copernicus.org/articles/18/8409/2018/>.
- S. S. Dhomse, G. W. Mann, J. C. Antuña Marrero, S. E. Shallcross, M. P. Chipperfield, K. S. Carslaw, L. Marshall, N. L. Abraham, and C. E. Johnson. Evaluating the simulated radiative forcings, aerosol properties, and stratospheric warmings from the 1963 mt agung, 1982 el chichón, and 1991 mt pinatubo volcanic aerosol clouds. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20(21) :13627–13654, 2020. doi : 10.5194/acp-20-13627-2020. URL <https://acp.copernicus.org/articles/20/13627/2020/>.
- A. Dowdy, M. Fromm, and N. McCarthy. Pyrocumulonimbus lightning and fire ignition on black saturday in southeast australia. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 122(14) :7342–7354, 2017. doi : 10.1002/2017JD026577. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/2017JD026577>.
- A. Dowdy, H. Ye, A. Pepler, M. Thatcher, S. Osbrough, J. Evans, G. Di Virgilio, and N. McCarthy. Future changes in extreme weather and pyroconvection risk factors for australian wildfires. *Scientific Reports*, 9 :10073, 07 2019. doi : 10.1038/s41598-019-46362-x. URL <https://doi.org/10.1038/s41598-019-46362-x>.
- K. Drdla and R. Müller. Temperature thresholds for chlorine activation and ozone loss in the polar stratosphere. *Annales Geophysicae*, 30(7) :1055–1073, 2012. URL <https://angeo.copernicus.org/articles/30/1055/2012/>.
- K. Drdla, R. P. Turco, and S. Elliott. Heterogeneous chemistry on antarctic polar stratospheric clouds : A microphysical estimate of the extent of chemical processing. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 98(D5) : 8965–8981, 1993. doi : <https://doi.org/10.1029/93JD00164>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/93JD00164>.
- K. Drdla, M. R. Schoeberl, and E. V. Browell. Microphysical modeling of the 1999–2000 arctic winter : 1. polar stratospheric clouds, denitrification, and dehydration. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 107(D5) :SOL

- 55–1–SOL 55–21, 2002. doi : <https://doi.org/10.1029/2001JD000782>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2001JD000782>.
- J. E. Dye, D. Baumgardner, B. W. Gandrud, S. R. Kawa, K. K. Kelly, M. Loewenstein, G. V. Ferry, K. R. Chan, and B. L. Gary. Particle size distributions in arctic polar stratospheric clouds, growth and freezing of sulfuric acid droplets, and implications for cloud formation. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 97(D8) :8015–8034, 1992. doi : <https://doi.org/10.1029/91JD02740>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/91JD02740>.
- M. Ebert, R. Weigel, K. Kandler, G. Günther, S. Molleker, J.-U. Grooß, B. Vogel, S. Weinbruch, and S. Borrmann. Chemical analysis of refractory stratospheric aerosol particles collected within the arctic vortex and inside polar stratospheric clouds. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(13) :8405–8421, 2016. doi : 10.5194/acp-16-8405-2016. URL <https://acp.copernicus.org/articles/16/8405/2016/>.
- S. D. Eckermann, D. L. Wu, J. D. Doyle, J. F. Burris, T. J. McGee, C. A. Hostetler, L. Coy, B. N. Lawrence, A. Stephens, J. P. McCormack, and T. F. Hogan. Imaging gravity waves in lower stratospheric amsu-a radiances, part 2 : Validation case study. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(11) :3343–3362, 2006. doi : 10.5194/acp-6-3343-2006. URL <https://acp.copernicus.org/articles/6/3343/2006/>.
- S. Eckhardt, A. Stohl, H. Wernli, P. James, C. Forster, and N. Spichtinger. A 15-year climatology of warm conveyor belts. *Journal of Climate*, 17(1) :218 – 237, 2004. doi : 10.1175/1520-0442(2004)017<0218:AYCOWC>2.0.CO;2. URL https://journals.ametsoc.org/view/journals/clim/17/1/1520-0442_2004_017_0218_aycowc_2.0.co_2.xml.
- I. Engel, B. P. Luo, M. C. Pitts, L. R. Poole, C. R. Hoyle, J.-U. Grooß, A. Dörnbrack, and T. Peter. Heterogeneous formation of polar stratospheric clouds – part 2 : Nucleation of ice on synoptic scales. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(21) :10769–10785, 2013. doi : 10.5194/acp-13-10769-2013. URL <https://acp.copernicus.org/articles/13/10769/2013/>.
- I. Engel, B. P. Luo, S. M. Khaykin, F. G. Wienhold, H. Vömel, R. Kivi, C. R. Hoyle, J.-U. Grooß, M. C. Pitts, and T. Peter. Arctic stratospheric dehydration – part 2 : Microphysical modeling. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(7) :3231–3246, 2014. doi : 10.5194/acp-14-3231-2014. URL <https://acp.copernicus.org/articles/14/3231/2014/>.
- V. Eyring, J. M. Arblaster, I. Cionni, J. Sedláček, J. Perlwitz, P. J. Young, S. Bekki, D. Bergmann, P. Cameron-Smith, W. J. Collins, G. Faluvegi, K.-D. Gottschaldt, L. W. Horowitz, D. E. Kinnison, J.-F. Lamarque, D. R. Marsh, D. Saint-Martin, D. T. Shindell, K. Sudo, S. Szopa, and S. Watanabe. Long-term ozone changes and associated climate impacts in cmip5 simulations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118(10) :5029–5060,

2013. doi : <https://doi.org/10.1002/jgrd.50316>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/jgrd.50316>.
- F. G. Fernald. Analysis of atmospheric lidar observations : some comments. *Applied Optics*, 23(5) :652–653, Mar 1984. doi : 10.1364/AO.23.000652. URL <http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-23-5-652>.
- F. G. Fernald, B. M. Herman, and J. A. Reagan. Determination of aerosol height distributions by lidar. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 11(3) :482 – 489, 1972. doi : 10.1175/1520-0450(1972)011<0482:DOAHDB>2.0.CO;2. URL https://journals.ametsoc.org/view/journals/apme/11/3/1520-0450_1972_011_0482_doahdb_2_0_co_2.xml.
- M. Fiebig, C. R. Lunder, and A. Stohl. Tracing biomass burning aerosol from south america to troll research station, antarctica. *Geophysical Research Letters*, 36(14), 2009. doi : 10.1029/2009GL038531.
- F. Fierli, A. Hauchecorne, and B. Knudsen. Analysis of polar stratospheric clouds using temperature and aerosols measured by the alomar r/m/r lidar. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 106(D20) :24127–24141, 2001. doi : <https://doi.org/10.1029/2001JD900062>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2001JD900062>.
- L. Flynn, C. Long, X. Wu, R. Evans, C. T. Beck, I. Petropavlovskikh, G. McConville, W. Yu, Z. Zhang, J. Niu, E. Beach, Y. Hao, C. Pan, B. Sen, M. Novicki, S. Zhou, and C. Seftor. Performance of the ozone mapping and profiler suite (omps) products. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 119(10) :6181–6195, 2014. doi : 10.1002/2013JD020467. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/2013JD020467>.
- M. Fromm, J. Alfred, K. Hoppel, J. Hornstein, R. Bevilacqua, E. Shettle, R. Servranckx, Z. Li, and B. Stocks. Observations of boreal forest fire smoke in the stratosphere by poam iii, sage ii, and lidar in 1998. *Geophysical Research Letters*, 27(9) :1407–1410, 2000. doi : <https://doi.org/10.1029/1999GL011200>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/1999GL011200>.
- M. Fromm, R. Bevilacqua, R. Servranckx, J. Rosen, J. P. Thayer, J. Herman, and D. Larko. Pyro-cumulonimbus injection of smoke to the stratosphere : Observations and impact of a super blowup in northwestern canada on 3–4 august 1998. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 110(D8), 2005. doi : <https://doi.org/10.1029/2004JD005350>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2004JD005350>.
- M. Fromm, A. Tupper, D. Rosenfeld, R. Servranckx, and R. McRae. Violent pyro-convective storm devastates australia's capital and pollutes the stratosphere. *Geophysical Research Letters*, 33, 03 2006. doi : 10.1029/2005GL025161.

- M. Fromm, D. Lindsey, R. Servranckx, G. Yue, T. Trickl, R. Sica, P. Doucet, and S. Godin-Beekmann. The untold story of pyrocumulonimbus. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 91(9) :1193–1210, 09 2010. ISSN 0003-0007. doi : 10.1175/2010BAMS3004.1. URL <https://doi.org/10.1175/2010BAMS3004.1>.
- S. Fueglistaler, B. P. Luo, S. Buss, H. Wernli, C. Voigt, M. Müller, R. Neuber, C. A. Hostetler, L. R. Poole, H. Flentje, D. W. Fahey, M. J. Northway, and T. Peter. Large nat particle formation by mother clouds : Analysis of solve/theseo-2000 observations. *Geophysical Research Letters*, 29(12) :52–1–52–4, 2002a. doi : <https://doi.org/10.1029/2001GL014548>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2001GL014548>.
- S. Fueglistaler, B. P. Luo, C. Voigt, K. S. Carslaw, and T. Peter. Nat-rock formation by mother clouds : a microphysical model study. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2(2) :93–98, 2002b. doi : 10.5194/acp-2-93-2002. URL <https://acp.copernicus.org/articles/2/93/2002/>.
- H. Grothe, H. Tizek, D. Waller, and D. J. Stokes. The crystallization kinetics and morphology of nitric acid trihydrate. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 8 :2232–2239, 2006. doi : 10.1039/B601514J. URL <http://dx.doi.org/10.1039/B601514J>.
- E.-A. Guérette, C. Paton-Walsh, M. Desservettaz, T. E. L. Smith, L. Volkova, C. J. Weston, and C. P. Meyer. Emissions of trace gases from australian temperate forest fires : emission factors and dependence on modified combustion efficiency. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(5) :3717–3735, 2018. doi : 10.5194/acp-18-3717-2018. URL <https://acp.copernicus.org/articles/18/3717/2018/>.
- S. Guo, G. J. S. Bluth, W. I. Rose, I. M. Watson, and A. J. Prata. Re-evaluation of so2 release of the 15 june 1991 pinatubo eruption using ultraviolet and infrared satellite sensors. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 5(4), 2004. doi : <https://doi.org/10.1029/2003GC000654>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2003GC000654>.
- J. E. Hansen and L. D. Travis. Light scattering in planetary atmospheres. *Space Science Reviews*, 16(4) :527–610, 1974. doi : 10.1007/BF00168069. URL <https://doi.org/10.1007/BF00168069>.
- D. Hanson and K. Mauersberger. Laboratory studies of the nitric acid trihydrate : Implications for the south polar stratosphere. *Geophysical Research Letters*, 15(8) :855–858, 1988a. doi : <https://doi.org/10.1029/GL015i008p00855>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/GL015i008p00855>.
- D. Hanson and K. Mauersberger. Laboratory studies of the nitric acid trihydrate : Implications for the south polar stratosphere. *Geophysical Research Letters*, 15(8) :855–858, 1988b. doi : <https://doi.org/10.1029/GL015i008p00855>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/GL015i008p00855>.
- D. R. Hanson and A. R. Ravishankara. Reaction of clono2 with hcl on nat, nad, and frozen sulfuric acid and hydrolysis of n2o5 and clono2 on frozen sulfuric acid. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 98(D12) :

22931–22936, 1993. doi : <https://doi.org/10.1029/93JD01929>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/93JD01929>.

- A. Hauchecorne, S. Godin-Beekmann, M. Marchand, B. Heese, and C. Souprayen. Quantification of the transport of chemical constituents from the polar vortex to midlatitudes in the lower stratosphere using the high-resolution advection model mimosa and effective diffusivity. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 107, 09 2002. doi : 10.1029/2001JD000491.
- K. Hennessy. Climate change impacts on fire-weather in south-east australia. In *The Joint AFAC/IFCAA Bushfire CRC Conference : 10-13 August 2006 : Melbourne Convention Centre Australia : conference proceedings*, pages 536–546, East Melbourne, Victoria, 2006. Bushfire CRC.
- H. Hersbach, B. Bell, P. Berrisford, S. Hirahara, A. Horányi, J. Muñoz-Sabater, J. Nicolas, C. Peubey, R. Radu, D. Schepers, A. Simmons, C. Soci, S. Abdalla, X. Abellan, G. Balsamo, P. Bechtold, G. Biavati, J. Bidlot, M. Bonavita, G. De Chiara, P. Dahlgren, D. Dee, M. Diamantakis, R. Dragani, J. Flemming, R. Forbes, M. Fuentes, A. Geer, L. Haimberger, S. Healy, R. J. Hogan, E. Hólm, M. Janisková, S. Keeley, P. Laloyaux, P. Lopez, C. Lupu, G. Radnoti, P. de Rosnay, I. Rozum, F. Vamborg, S. Villaume, and J.-N. Thépaut. The era5 global reanalysis. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 146(730) :1999–2049, 2020. doi : <https://doi.org/10.1002/qj.3803>. URL <https://rmets.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/qj.3803>.
- E. Hirsch and I. Koren. Record-breaking aerosol levels explained by smoke injection into the stratosphere. *Science*, 371(6535) :1269–1274, 2021. doi : 10.1126/science.abe1415. URL <https://www.science.org/doi/abs/10.1126/science.abe1415>.
- P. V. Hobbs, J. S. Reid, J. A. Herring, J. D. Nance, and R. E. Weiss. Particle and trace-gas measurements in the smoke from prescribed burns of forest products in the pacific northwest, in : Biomass burning and global change, vol. 1. *Levine, J. S., MIT Press, New York*, 1(10) :697–715, 1996.
- D. J. Hofmann, J. M. Rosen, J. W. Harder, and J. V. Hereford. Balloon-borne measurements of aerosol, condensation nuclei, and cloud particles in the stratosphere at mcmurdo station, antarctica, during the spring of 1987. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 94(D9) :11253–11269, 1989. doi : <https://doi.org/10.1029/JD094iD09p11253>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/JD094iD09p11253>.
- M. Höpfner, N. Larsen, R. Spang, B. P. Luo, J. Ma, S. H. Svendsen, S. D. Eckermann, B. Knudsen, P. Massoli, F. Cairo, G. Stiller, T. v. Clarmann, and H. Fischer. Mipas detects antarctic stratospheric belt of nat pscs caused by mountain waves. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(5) :1221–1230, 2006. doi : 10.5194/acp-6-1221-2006. URL <https://acp.copernicus.org/articles/6/1221/2006/>.

- C. A. Hostetler, Z. Liu, J. Reagan, M. Vaughan, D. Winker, M. Osborn, W. H. Hunt, K. A. Powell, and C. Trepte. *CALIPSO Algorithm Theoretical Basis Document- Part 1 : Calibration and Level 1 Data Products*, 2006. URL http://www-calipso.larc.nasa.gov/resources/project_documentation.php.
- C. R. Hoyle, I. Engel, B. P. Luo, M. C. Pitts, L. R. Poole, J.-U. GroöB, and T. Peter. Heterogeneous formation of polar stratospheric clouds – part 1 : Nucleation of nitric acid trihydrate (nat). *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(18) :9577–9595, 2013. doi : 10.5194/acp-13-9577-2013. URL <https://acp.copernicus.org/articles/13/9577/2013/>.
- Q. Hu, P. Goloub, I. Veselovskii, J.-A. Bravo-Aranda, I. E. Popovici, T. Podvin, M. Haeffelin, A. Lopatin, O. Dubovik, C. Pietras, X. Huang, B. Torres, and C. Chen. Long-range-transported canadian smoke plumes in the lower stratosphere over northern france. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(2) :1173–1193, 2019. doi : 10.5194/acp-19-1173-2019. URL <https://acp.copernicus.org/articles/19/1173/2019/>.
- Q. Hu, P. Goloub, I. Veselovskii, and T. Podvin. The characterization of long-range transported north american biomass burning plumes : what can a multi-wavelength mie–raman-polarization-fluorescence lidar provide? *Atmospheric Chemistry and Physics*, 22(8) :5399–5414, 2022. doi : 10.5194/acp-22-5399-2022. URL <https://acp.copernicus.org/articles/22/5399/2022/>.
- L. T. Iraci, A. M. Middlebrook, and M. A. Tolbert. Laboratory studies of the formation of polar stratospheric clouds : Nitric acid condensation on thin sulfuric acid films. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 100(D10) : 20969–20977, 1995. doi : <https://doi.org/10.1029/95JD02267>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/95JD02267>.
- Y. Iwasaka, T. Ono, and A. Nonura. Changes in aerosol content and temperature in the antarctic spring stratosphere : Lidar measurement at syowa station (69°00 s, 39°35e) in 1983, 1984 and 1985. *Geophysical Research Letters*, 13 (13) :1407–1410, 1986. doi : <https://doi.org/10.1029/GL013i013p01407>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/GL013i013p01407>.
- D. J. Jacob. *Introduction to Atmospheric Chemistry*. Princeton University Press, 1999. ISBN 9780691001852. URL <http://www.jstor.org/stable/j.ctt7t8hg>.
- A. D. James, J. S. A. Brooke, T. P. Mangan, T. F. Whale, J. M. C. Plane, and B. J. Murray. Nucleation of nitric acid hydrates in polar stratospheric clouds by meteoric material. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(7) :4519–4531, 2018. doi : 10.5194/acp-18-4519-2018. URL <https://acp.copernicus.org/articles/18/4519/2018/>.
- G. Jancso, J. Pupezin, and W. A. Van Hook. Vapor pressure of ice between +10⁻² and -1020. *The Journal of Physical Chemistry*, 74(15) :2984–2989, 1970. doi : 10.1021/j100709a025. URL <https://doi.org/10.1021/j100709a025>.

- G. Jaross, P. K. Bhartia, G. Chen, M. Kowitt, M. Haken, Z. Chen, P. Xu, J. Warner, and T. Kelly. Omps limb profiler instrument performance assessment. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 119(7) :4399–4412, 2014. doi : 10.1002/2013JD020482. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/2013JD020482>.
- J. Jumelet, S. Bekki, C. David, and P. Keckhut. Statistical estimation of stratospheric particle size distribution by combining optical modelling and lidar scattering measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(17) : 5435–5448, 2008. doi : 10.5194/acp-8-5435-2008. URL <https://acp.copernicus.org/articles/8/5435/2008/>.
- J. Jumelet, A. R. Klekociuk, S. P. Alexander, S. Bekki, A. Hauchecorne, J. P. Vernier, M. Fromm, and P. Keckhut. Detection of aerosols in antarctica from long-range transport of the 2009 australian wildfires. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 125(23) :e2020JD032542, 2020. doi : <https://doi.org/10.1029/2020JD032542>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2020JD032542>. e2020JD032542 2020JD032542.
- C. E. Junge and J. E. Manson. Stratospheric aerosol studies. *Journal of Geophysical Research (1896-1977)*, 66 (7) :2163–2182, 1961. doi : <https://doi.org/10.1029/JZ066i007p02163>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/JZ066i007p02163>.
- G. Kablick III, D. Allen, M. Fromm, and G. Nedoluha. Australian pyrocb smoke generates synoptic-scale stratospheric anticyclones. *Geophysical Research Letters*, 47(13) :e2020GL088101, 2020. doi : 10.1029/2020GL088101. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2020GL088101>.
- E. Kalnay, M. Kanamitsu, R. Kistler, W. Collins, D. Deaven, L. Gandin, M. Iredell, S. Saha, G. White, J. Woollen, Y. Zhu, M. Chelliah, W. Ebisuzaki, W. Higgins, J. Janowiak, K. C. Mo, C. Ropelewski, J. Wang, A. Leetmaa, R. Reynolds, R. Jenne, and D. Joseph. The ncep/ncar 40-year reanalysis project. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 77(3) :437 – 472, 1996. doi : 10.1175/1520-0477(1996)077<0437:TNYRP>2.0.CO;2. URL https://journals.ametsoc.org/view/journals/bams/77/3/1520-0477_1996_077_0437_tnyrp_2_0_co_2.xml.
- S. Khaykin, S. Godin-Beekmann, A. Hauchecorne, J. Pelon, F. Ravetta, and P. Keckhut. Stratospheric smoke with unprecedentedly high backscatter observed by lidars above southern france. *Geophysical Research Letters*, 45 (3) :1639–1646, 2018. doi : 10.1002/2017GL076763. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/2017GL076763>.
- S. Khaykin, B. Legras, S. Bucci, P. Sellitto, L. Isaksen, F. Tencé, S. Bekki, A. Bourassa, L. Rieger, D. Zawada, J. Jumelet, and S. Godin-Beekman. The 2019/20 australian wildfires generated a persistent smoke-charged vortex rising up to 35km altitude. *Communications Earth & Environment*, 1(1) :22, 2020. doi : 10.1038/s43247-020-00022-5. URL <https://doi.org/10.1038/s43247-020-00022-5>.

- S. Khaykin, A. Podglajen, F. Ploeger, J. U. Grooß, F. Tencé, S. Bekki, K. Khlopenkov, K. Bedka, L. Rieger, A. Baron, S. Godin-Beekmann, B. Legras, P. Sellitto, T. Sakai, J. Barnes, O. Uchino, I. Morino, T. Nagai, R. Wing, G. Baumgarten, M. Gerding, V. Dufлот, G. Payen, J. Jumelet, R. Querel, B. Liley, A. Bourassa, A. Hauchecorne, F. Ravetta, B. Clouser, and A. Feofilov. Global perturbation of stratospheric water and aerosol burden by hunga eruption - preprint. *Communications Earth & Environment*, 2022. URL <https://doi.org/10.21203/rs.3.rs-1864748/v1>.
- F. Khosrawi, J. Urban, M. C. Pitts, P. Voelger, P. Achtert, M. Kaphlanov, M. L. Santee, G. L. Manney, D. Murtagh, and K.-H. Fricke. Denitrification and polar stratospheric cloud formation during the arctic winter 2009/2010. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(16) :8471–8487, 2011. doi : 10.5194/acp-11-8471-2011. URL <https://acp.copernicus.org/articles/11/8471/2011/>.
- J. D. Klett. Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios. *Applied Optics*, 24(11) :1638–1643, 06 1985. doi : 10.1364/AO.24.001638. URL <http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-24-11-1638>.
- C. Kloss, G. Berthet, P. Sellitto, F. Ploeger, G. Taha, M. Tidiga, M. Eremenko, A. Bossolasco, F. Jégou, J.-B. Renard, and B. Legras. Stratospheric aerosol layer perturbation caused by the 2019 raikoke and ulawun eruptions and their radiative forcing. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(1) :535–560, 2021. doi : 10.5194/acp-21-535-2021. URL <https://acp.copernicus.org/articles/21/535/2021/>.
- T. Koop, U. M. Biermann, W. Raber, B. P. Luo, P. J. Crutzen, and T. Peter. Do stratospheric aerosol droplets freeze above the ice frost point? *Geophysical Research Letters*, 22(8) :917–920, 1995. doi : <https://doi.org/10.1029/95GL00814>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/95GL00814>.
- T. Koop, H. P. Ng, L. T. Molina, and M. J. Molina. A new optical technique to study aerosol phase transitions : The nucleation of ice from h₂so₄ aerosols. *The Journal of Physical Chemistry A*, 102(45) :8924–8931, 1998. doi : 10.1021/jp9828078. URL <https://doi.org/10.1021/jp9828078>.
- T. Koop, B. Luo, A. Tsias, and T. Peter. Water activity as the determinant for homogeneous ice nucleation in aqueous solutions. *Nature*, 406(6796) :611–614, 2000. doi : 10.1038/35020537. URL <https://doi.org/10.1038/35020537>.
- S. Kremser, L. W. Thomason, M. von Hobe, M. Hermann, T. Deshler, C. Timmreck, M. Toohey, A. Stenke, J. P. Schwarz, R. Weigel, S. Fueglistaler, F. J. Prata, J.-P. Vernier, H. Schlager, J. E. Barnes, J.-C. Antuña-Marrero, D. Fairlie, M. Palm, E. Mahieu, J. Notholt, M. Rex, C. Bingen, F. Vanhellefont, A. Bourassa, J. M. C. Plane, D. Klocke, S. A. Carn, L. Clarisse, T. Trickl, R. Neely, A. D. James, L. Rieger, J. C. Wilson, and B. Meland. Stratospheric aerosol—observations, processes, and impact on climate. *Reviews of Geophysics*, 54(2) :278–335, 2016. doi : <https://doi.org/10.1002/2015RG000511>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/2015RG000511>.

- U. K. Krieger, J. C. Mössinger, B. Luo, U. Weers, and T. Peter. Measurement of the refractive indices of h₂so₄–hno₃–h₂o solutions to stratospheric temperatures. *Appl. Opt.*, 39(21) :3691–3703, Jul 2000. doi : 10.1364/AO.39.003691. URL <http://opg.optica.org/ao/abstract.cfm?URI=ao-39-21-3691>.
- A. Lacis, J. Hansen, and M. Sato. Climate forcing by stratospheric aerosols. *Geophysical Research Letters*, 19(15) : 1607–1610, 1992. doi : <https://doi.org/10.1029/92GL01620>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/92GL01620>.
- N. Larsen. *Polar stratospheric clouds : Microphysical and optical models*. Danish Meteorological Institute, 2000.
- N. Larsen, I. S. Mikkelsen, B. M. Knudsen, J. Schreiner, C. Voigt, K. Mauersberger, J. M. Rosen, and N. T. Kjome. Comparison of chemical and optical in situ measurements of polar stratospheric cloud particles. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 105(D1) :1491–1502, 2000. doi : <https://doi.org/10.1029/1999JD900910>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/1999JD900910>.
- F. Lefèvre, G. P. Brasseur, I. Folkins, A. K. Smith, and P. Simon. Chemistry of the 1991–1992 stratospheric winter : Three-dimensional model simulations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 99(D4) :8183–8195, 1994. doi : <https://doi.org/10.1029/93JD03476>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/93JD03476>.
- P. Levelt, G. Oord, M. Dobber, A. Mälkki, H. Visser, J. Vries, P. Stammes, J. Lundell, and H. Saari. The ozone monitoring instrument. *IEEE T. Geoscience and Remote Sensing*, 44 :1093–1101, 05 2006. doi : 10.1109/TGRS.2006.872333.
- E. Lim, H. Hendon, G. Boschat, D. Hudson, D. W. Thompson, A. Dowdy, and J. Arblaster. Australian hot and dry extremes induced by weakenings of the stratospheric polar vortex. *Nature Geoscience*, 12 :896–901, 11 2019. doi : 10.1038/s41561-019-0456-x. URL <https://doi.org/10.1038/s41561-019-0456-x>.
- Z. Liu, W. Hunt, M. Vaughan, C. Hostetler, M. McGill, K. Powell, D. Winker, and Y. Hu. Estimating random errors due to shot noise in backscatter lidar observations. *Appl. Opt.*, 45(18) :4437–4447, Jun 2006. doi : 10.1364/AO.45.004437. URL <http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-45-18-4437>.
- N. J. Livesey, W. G. Read, A. Lambert, R. E. Cofield, D. T. Cuddy, L. Froidevaux, R. A. Fuller, R. F. Jarnot, J. H. Jiang, Y. Jiang, B. W. Knosp, L. J. Kovalenko, H. M. Pickett, H. C. Pumphrey, S. M. L., M. J. Schwartz, P. C. Stek, P. A. Wagner, J. W. Waters, and D. L. Wu. Eos mls version 2.2 level 2 data quality and description document. technical report. *Jet Propulsion Laboratory D-33509, Pasadena, California*, 2007.
- C. Lucas, K. J. Hennessy, G. A. Mills, and J. M. Bathols. Bushfire weather in southeast australia recent trends and projected climate change impacts ; consultancy report prepared for the climate institute of australia. *Bushfire*

- Cooperative Research Centre, Australian Bureau of Meteorology and CSIRO Marine and Atmospheric Research, 2007. doi : 10.25919/5e31c82ee0a4c. URL <https://doi.org/10.25919/5e31c82ee0a4c>.
- B. Luo, T. Peter, and P. Crutzen. Freezing of stratospheric aerosol droplets. *Geophysical Research Letters*, 21(13) : 1447–1450, 1994. doi : <https://doi.org/10.1029/93GL03076>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/93GL03076>.
- B. Luo, K. S. Carslaw, T. Peter, and S. L. Clegg. vapour pressures of h₂so₄/hno₃/hcl/hbr/h₂o solutions to low stratospheric temperatures. *Geophysical Research Letters*, 22(3) :247–250, 1995. doi : <https://doi.org/10.1029/94GL02988>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/94GL02988>.
- B. Luo, U. K. Krieger, and T. Peter. Densities and refractive indices of h₂so₄/hno₃/h₂o solutions to stratospheric temperatures. *Geophysical Research Letters*, 23(25) :3707–3710, 1996. doi : <https://doi.org/10.1029/96GL03581>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/96GL03581>.
- B. P. Luo, C. Voigt, S. Fueglistaler, and T. Peter. Extreme nat supersaturations in mountain wave ice pscs : A clue to nat formation. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D15), 2003. doi : <https://doi.org/10.1029/2002JD003104>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2002JD003104>.
- A. R. MacKenzie, M. Kulmala, A. Laaksonen, and T. Vesala. On the theories of type 1 polar stratospheric cloud formation. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 100(D6) :11275–11288, 1995. doi : <https://doi.org/10.1029/95JD00699>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/95JD00699>.
- B. Martinsson, J. Friberg, O. Sandvik, M. Hermann, P. van Velthoven, and A. Zahn. Formation and composition of the utls aerosol. *NPJ Climate and Atmospheric Science*, 2 :40, 2019. doi : 10.1038/s41612-019-0097-1. URL <https://doi.org/10.1038/s41612-019-0097-1>.
- P. Massoli, M. Maturilli, and R. Neuber. Climatology of arctic polar stratospheric clouds as measured by lidar in ny-Ålesund, spitsbergen (79°n, 12°e). *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 111(D9), 2006. doi : <https://doi.org/10.1029/2005JD005840>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2005JD005840>.
- A. C. Maycock, W. J. Randel, A. K. Steiner, A. Y. Karpechko, J. Christy, R. Saunders, D. W. J. Thompson, C.-Z. Zou, A. Chrysanthou, N. Luke Abraham, H. Akiyoshi, A. T. Archibald, N. Butchart, M. Chipperfield, M. Dameris, M. Deushi, S. Dhomse, G. Di Genova, P. Jöckel, D. E. Kinnison, O. Kirner, F. Ladstädter, M. Michou, O. Morgenstern, F. O'Connor, L. Oman, G. Pitari, D. A. Plummer, L. E. Revell, E. Rozanov, A. Stenke, D. Vioni, Y. Yamashita, and G. Zeng. Revisiting the mystery of recent stratospheric temperature trends. *Geophysical Research Letters*, 45(18) :9919–9933, 2018. doi : <https://doi.org/10.1029/2018GL078035>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2018GL078035>.

- A. McArthur. Causes and consequences of eastern australia's 2019–20 season of mega-fires : A broader perspective. *Forest Research Institute, Forestry and Timber Bureau. Canberra, ACT.*, Leaflet No. 107, 1967.
- R. McRae, J. Sharples, and M. Fromm. Linking local wildfire dynamics to pyrocb development. *Natural Hazards and Earth System Sciences*, 15(3) :417–428, 2015. doi : 10.5194/nhess-15-417-2015. URL <https://www.nat-hazards-earth-syst-sci.net/15/417/2015/>.
- L. Millán, M. L. Santee, A. Lambert, N. J. Livesey, F. Werner, M. J. Schwartz, H. C. Pumphrey, G. L. Manney, Y. Wang, H. Su, L. Wu, W. G. Read, and L. Froidevaux. The hunga tonga-hunga ha'apai hydration of the stratosphere. *Geophysical Research Letters*, 49(13) :e2022GL099381, 2022. doi : <https://doi.org/10.1029/2022GL099381>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2022GL099381>. e2022GL099381 2022GL099381.
- K. Mohanakumar. *Structure and Composition of the Lower and Middle Atmosphere*, pages 1–53. Springer Netherlands, Dordrecht, 2008. ISBN 978-1-4020-8217-7. doi : 10.1007/978-1-4020-8217-7_1. URL https://doi.org/10.1007/978-1-4020-8217-7_1.
- M. J. Molina and F. S. Rowland. Stratospheric sink for chlorofluoromethanes : chlorine atom-catalysed destruction of ozone. *Nature*, 249(5460) :810–812, 1974. doi : <https://doi.org/10.1038/249810a0>. URL <https://doi.org/10.1038/249810a0>.
- M. J. Molina, R. Zhang, P. J. Wooldridge, J. R. McMahon, J. E. Kim, H. Y. Chang, and K. D. Beyer. Physical chemistry of the $\text{SO}_2/\text{HNO}_3/\text{HO}_2$ system : Implications for polar stratospheric clouds. *Science*, 261(5127) :1418–1423, 1993. doi : 10.1126/science.261.5127.1418. URL <https://www.science.org/doi/abs/10.1126/science.261.5127.1418>.
- S. A. Montzka, P. Calvert, B. D. Hall, J. W. Elkins, T. J. Conway, P. P. Tans, and C. Sweeney. On the global distribution, seasonality, and budget of atmospheric carbonyl sulfide (cos) and some similarities to CO_2 . *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D9), 2007. doi : <https://doi.org/10.1029/2006JD007665>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2006JD007665>.
- M. Nicolet, R. Meier, and D. Anderson. Radiation fields in the troposphere and stratosphere - II. Numerical analysis. *Planetary and Space Science* 30, 935-983, 1982.
- T. Nikonovas, P. R. J. North, and S. H. Doerr. Particulate emissions from large north american wildfires estimated using a new top-down method. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(10) :6423–6438, 2017. doi : 10.5194/acp-17-6423-2017. URL <https://acp.copernicus.org/articles/17/6423/2017/>.
- V. Noel and M. Pitts. Gravity wave events from mesoscale simulations, compared to polar stratospheric clouds observed from spaceborne lidar over the antarctic peninsula. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*,

- 117(D11), 2012. doi : <https://doi.org/10.1029/2011JD017318>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2011JD017318>.
- R. Nolan, M. Boer, L. Collins, V. Resco de Dios, H. Clarke, M. Jenkins, B. Kenny, and R. Bradstock. Causes and consequences of eastern australia's 2019-20 season of mega-fires. *Global Change Biology*, 01 2020. doi : 10.1111/gcb.14987.
- K. Ohneiser, A. Ansmann, H. Baars, P. Seifert, B. Barja, C. Jimenez, M. Radenz, A. Teisseire, A. Floutsi, M. Haarig, R. Engelmann, F. Zamorano, J. Bühl, and U. Wandinger. Smoke of extreme australian bushfires observed in the stratosphere over punta arenas, chile, in january 2020 : optical thickness, lidar ratios, and depolarization ratios at 355 and 532nm. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 2020 :1–16, 2020. doi : 10.5194/acp-2020-96. URL <https://www.atmos-chem-phys-discuss.net/acp-2020-96/>.
- E. Parzen. On Estimation of a Probability Density Function and Mode. *The Annals of Mathematical Statistics*, 33 (3) :1065 – 1076, 1962. doi : 10.1214/aoms/1177704472. URL <https://doi.org/10.1214/aoms/1177704472>.
- J. Penner, M. Andreae, and M. Annegarn. Aerosol, their direct and indirect effects, in : Climate change 2001 : The scientific basis. *Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, 5 :291–336, 01 2001.
- D. Peterson, M. Fromm, R. H. D. McRae, J. R. Campbelle, E. J. Hyer, G. Taha, C. P. Camacho, G. P. Kablick, C. C. Schmidt, and M. T. DeLand. Australia's black summer pyrocumulonimbus super outbreak reveals potential for increasingly extreme stratospheric smoke events. *npj Climate and Atmospheric Science*, 4(38) : 2235–2255, 07 2021. ISSN 2397-3722. doi : 10.1038/s41612-021-00192-9. URL <https://doi.org/10.1038/s41612-021-00192-9>.
- D. A. Peterson, E. J. Hyer, J. R. Campbell, J. E. Solbrig, and M. D. Fromm. A conceptual model for development of intense pyrocumulonimbus in western north america. *Monthly Weather Review*, 145(6) :2235 – 2255, 2017. doi : 10.1175/MWR-D-16-0232.1. URL <https://journals.ametsoc.org/view/journals/mwre/145/6/mwr-d-16-0232.1.xml>.
- D. A. Peterson, E. J. R., H. E. J., M. D. Fromm, G. P. Kablick, J. H. Cossuth, and M. T. DeLand. Wildfire-driven thunderstorms cause a volcano-like stratospheric injection of smoke. *npj Climate and Atmospheric Science*, 1(1), 2018. doi : 10.1038/s41612-018-0039-3. URL <https://doi.org/10.1038/s41612-018-0039-3>.
- R. G. Pinnick, J. M. Rosen, and D. J. Hofmann. Stratospheric aerosol measurements iii : Optical model calculations. *Journal of Atmospheric Sciences*, 33(2) :304 – 314, 1976. doi : 10.1175/1520-0469(1976)033<0304:SAMIOM>2.0.CO;2. URL https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/33/2/1520-0469_1976_033_0304_samiom_2_0_co_2.xml.

- M. C. Pitts, L. R. Poole, and L. W. Thomason. Calipso polar stratospheric cloud observations : second-generation detection algorithm and composition discrimination. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(19) :7577–7589, 2009. doi : 10.5194/acp-9-7577-2009. URL <https://acp.copernicus.org/articles/9/7577/2009/>.
- M. C. Pitts, L. R. Poole, A. Dörnbrack, and L. W. Thomason. The 2009–2010 arctic polar stratospheric cloud season : a calipso perspective. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(5) :2161–2177, 2011. doi : 10.5194/acp-11-2161-2011. URL <https://acp.copernicus.org/articles/11/2161/2011/>.
- M. C. Pitts, L. R. Poole, A. Lambert, and L. W. Thomason. An assessment of caliop polar stratospheric cloud composition classification. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(6) :2975–2988, 2013. doi : 10.5194/acp-13-2975-2013. URL <https://acp.copernicus.org/articles/13/2975/2013/>.
- M. C. Pitts, L. R. Poole, and R. Gonzalez. Polar stratospheric cloud climatology based on calipso spaceborne lidar measurements from 2006 to 2017. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(15) :10881–10913, 2018. doi : 10.5194/acp-18-10881-2018. URL <https://acp.copernicus.org/articles/18/10881/2018/>.
- J. M. C. Plane. Cosmic dust in the earth’s atmosphere. *Chem. Soc. Rev.*, 41 :6507–6518, 2012. doi : 10.1039/C2CS35132C. URL <http://dx.doi.org/10.1039/C2CS35132C>.
- L. R. Poole and M. P. McCormick. Airborne lidar observations of arctic polar stratospheric clouds : Indications of two distinct growth stages. *Geophysical Research Letters*, 15(1) :21–23, 1988. doi : <https://doi.org/10.1029/GL015i001p00021>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/GL015i001p00021>.
- L. R. Poole, M. T. Osborn, and W. H. Hunt. Lidar observations of arctic polar stratospheric clouds, 1988 : Signature of small, solid particles above the frost point. *Geophysical Research Letters*, 15(8) :867–870, 1988. doi : <https://doi.org/10.1029/GL015i008p00867>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/GL015i008p00867>.
- A. T. Prata, S. A. Young, S. T. Siems, and M. J. Manton. Lidar ratios of stratospheric volcanic ash and sulfate aerosols retrieved from caliop measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(13) :8599–8618, 2017. doi : 10.5194/acp-17-8599-2017. URL <https://acp.copernicus.org/articles/17/8599/2017/>.
- W. J. Randel, A. K. Smith, F. Wu, C.-Z. Zou, and H. Qian. Stratospheric temperature trends over 1979–2015 derived from combined ssu, mls, and saber satellite observations. *Journal of Climate*, 29(13) :4843 – 4859, 2016. doi : 10.1175/JCLI-D-15-0629.1. URL <https://journals.ametsoc.org/view/journals/clim/29/13/jcli-d-15-0629.1.xml>.
- D. Rault and R. P. Loughman. The omps limb profiler environmental data record algorithm theoretical basis document and expected performance. *Geoscience and Remote Sensing, IEEE Transactions on*, 51 :2505–2527, 05 2013. doi : 10.1109/TGRS.2012.2213093.

- J. S. Reid, T. F. Eck, S. A. Christopher, R. Koppmann, O. Dubovik, D. P. Eleuterio, B. N. Holben, E. A. Reid, and J. Zhang. A review of biomass burning emissions part iii : intensive optical properties of biomass burning particles. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(3) :827–849, 2005. doi : 10.5194/acp-5-827-2005. URL <https://acp.copernicus.org/articles/5/827/2005/>.
- L. A. Rieger, W. J. Randel, A. E. Bourassa, and S. Solomon. Stratospheric temperature and ozone anomalies associated with the 2020 australian new year fires. *Geophysical Research Letters*, 48(24) :e2021GL095898, 2021. doi : <https://doi.org/10.1029/2021GL095898>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2021GL095898>. e2021GL095898 2021GL095898.
- G. Rolph, A. Stein, and B. Stunder. Real-time environmental applications and display system : Ready. *Environmental Modelling and Software*, 95 :210–228, 2017. ISSN 1364-8152. doi : <https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2017.06.025>. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1364815217302360>.
- M. Rosenblatt. Remarks on Some Nonparametric Estimates of a Density Function. *The Annals of Mathematical Statistics*, 27(3) :832 – 837, 1956. doi : 10.1214/aoms/1177728190. URL <https://doi.org/10.1214/aoms/1177728190>.
- S. Safieddine, M. Bouillon, A. Paracho, J. Jumelet, F. Tencé, A. Pazmino, F. Goutail, C. Wespes, S. Bekki, A. Boynard, J. Hadji-Lazaro, P. Coheur, D. Hurtmans, and C. Clerbaux. Antarctic ozone enhancement during the 2019 sudden stratospheric warming event. *Geophysical Research Letters*, n/a(n/a) :e2020GL087810, 2020. doi : 10.1029/2020GL087810. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2020GL087810>.
- V. Santacesaria, A. R. MacKenzie, and L. Stefanutti. A climatological study of polar stratospheric clouds (1989–1997) from lidar measurements over dumont d’urville (antarctica). *Tellus B*, 53(3) :306–321, 2001. doi : <https://doi.org/10.1034/j.1600-0889.2001.01155.x>. URL <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1034/j.1600-0889.2001.01155.x>.
- J. Schreiner, C. Voigt, A. Kohlmann, F. Arnold, K. Mauersberger, and N. Larsen. Chemical analysis of polar stratospheric cloud particles. *Science*, 283(5404) :968–970, 1999. doi : 10.1126/science.283.5404.968. URL <https://www.science.org/doi/abs/10.1126/science.283.5404.968>.
- J. Sharples, G. Cary, P. Fox-Hughes, S. Mooney, J. Evans, M. Fletcher, M. Fromm, P. Grierson, R. McRae, and P. Baker. Natural hazards in australia : extreme bushfire. *Climatic Change*, 139 :85–99, 11 2016. doi : 10.1007/s10584-016-1811-1. URL <https://doi.org/10.1007/s10584-016-1811-1>.
- J.-X. Sheng, D. K. Weisenstein, B.-P. Luo, E. Rozanov, A. Stenke, J. Anet, H. Bingemer, and T. Peter. Global atmospheric sulfur budget under volcanically quiescent conditions : Aerosol-chemistry-climate model predictions

- and validation. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 120(1) :256–276, 2015. doi : <https://doi.org/10.1002/2014JD021985>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/2014JD021985>.
- M. Snels, A. Scoccione, L. Di Liberto, F. Colao, M. Pitts, L. Poole, T. Deshler, F. Cairo, C. Cagnazzo, and F. Fierli. Comparison of antarctic polar stratospheric cloud observations by ground-based and space-borne lidar and relevance for chemistry–climate models. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(2) :955–972, 2019. doi : 10.5194/acp-19-955-2019. URL <https://acp.copernicus.org/articles/19/955/2019/>.
- M. Snels, F. Colao, F. Cairo, I. Shuli, A. Scoccione, M. De Muro, M. Pitts, L. Poole, and L. Di Liberto. Quasi-coincident observations of polar stratospheric clouds by ground-based lidar and caliop at concordia (dome c, antarctica) from 2014 to 2018. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(3) :2165–2178, 2021. doi : 10.5194/acp-21-2165-2021. URL <https://acp.copernicus.org/articles/21/2165/2021/>.
- B. J. Soden, R. T. Wetherald, G. L. Stenchikov, and A. Robock. Global cooling after the eruption of mount pinatubo : A test of climate feedback by water vapor. *Science*, 296(5568) :727–730, 2002. doi : 10.1126/science.296.5568.727. URL <https://www.science.org/doi/abs/10.1126/science.296.5568.727>.
- S. Solomon. Stratospheric ozone depletion : A review of concepts and history. *Reviews of Geophysics*, 37(3) : 275–316, 1999. doi : <https://doi.org/10.1029/1999RG900008>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/1999RG900008>.
- SPARC. SPARC Assessment of Stratospheric Aerosol Properties (ASAP). Technical report, SPARC, 2006. URL <http://www.sparc-climate.org/publications/sparc-reports/>.
- J. L. Stanford and J. S. Davis. a century of stratospheric cloud reports : 1870—1972. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 55(3) :213–219, 1974. ISSN 00030007, 15200477. URL <http://www.jstor.org/stable/26255012>.
- H. M. Steele, P. Hamill, M. P. McCormick, and T. J. Swissler. The formation of polar stratospheric clouds. *Journal of Atmospheric Sciences*, 40(8) :2055 – 2068, 1983. doi : 10.1175/1520-0469(1983)040<2055:TFOPSC>2.0.CO; 2. URL https://journals.ametsoc.org/view/journals/atasc/40/8/1520-0469_1983_040_2055_tfopsc_2_0_co_2.xml.
- A. Stein, R. Draxler, G. Rolph, B. Stunder, M. Cohen, and F. Ngan. Noaa’s hysplit atmospheric transport and dispersion modeling system. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 96(12) :2059–2077, 01 2016. ISSN 0003-0007. doi : 10.1175/BAMS-D-14-00110.1. URL <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-14-00110.1>.
- B. Stein, C. Wedekind, H. Wille, F. Immler, M. Müller, L. Wöste, M. del Guasta, M. Morandi, L. Stefanutti, A. Antonelli, P. Agostini, V. Rizi, G. Readelli, V. Mitev, R. Matthey, R. Kivi, and E. Kyrö. Optical classification,

- existence temperatures, and coexistence of different polar stratospheric cloud types. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104(D19) :23983–23993, 1999. doi : <https://doi.org/10.1029/1999JD900064>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/1999JD900064>.
- K. A. Stone, S. Solomon, D. E. Kinnison, and M. J. Mills. On recent large antarctic ozone holes and ozone recovery metrics. *Geophysical Research Letters*, 48(22) :e2021GL095232, 2021. doi : <https://doi.org/10.1029/2021GL095232>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2021GL095232>. e2021GL095232 2021GL095232.
- A. Tabazadeh and R. P. Turco. Stratospheric chlorine injection by volcanic eruptions : Hcl scavenging and implications for ozone. *Science*, 260(5111) :1082–1086, 1993. ISSN 00368075, 10959203. URL <http://www.jstor.org/stable/2881602>.
- A. Tabazadeh, R. P. Turco, K. Drdla, M. Z. Jacobson, and O. B. Toon. A study of type i polar stratospheric cloud formation. *Geophysical Research Letters*, 21(15) :1619–1622, 1994. doi : <https://doi.org/10.1029/94GL01368>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/94GL01368>.
- A. Tabazadeh, O. Toon, S. Clegg, and P. Hamill. A new parameterization of h₂so₄/h₂o aerosol composition : Atmospheric implications. *Geophysical Research Letters - GEOPHYS RES LETT*, 24, 08 1997. doi : 10.1029/97GL01879.
- M. Takigawa, M. Takahashi, and H. Akiyoshi. Simulation of stratospheric sulfate aerosols using a center for climate system research/national institute for environmental studies atmospheric gcm with coupled chemistry 1. nonvolcanic simulation. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 107(D22) :AAC 1–11, 2002. doi : <https://doi.org/10.1029/2001JD001007>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2001JD001007>.
- F. Tencé, J. Jumelet, S. Bekki, S. Khaykin, A. Sarkissian, and P. Keckhut. Australian black summer smoke observed by lidar at the french antarctic station dumont d'urville. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 127(4) : e2021JD035349, 2022. doi : <https://doi.org/10.1029/2021JD035349>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2021JD035349>. e2021JD035349 2021JD035349.
- M. Tesche, P. Achtert, and M. C. Pitts. On the best locations for ground-based polar stratospheric cloud (psc) observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(1) :505–516, 2021. doi : 10.5194/acp-21-505-2021. URL <https://acp.copernicus.org/articles/21/505/2021/>.
- O. B. Toon, R. P. Turco, J. Jordan, J. Goodman, and G. Ferry. Physical processes in polar stratospheric ice clouds. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 94(D9) :11359–11380, 1989. doi : <https://doi.org/10.1029/JD094iD09p11359>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/JD094iD09p11359>.

- O. B. Toon, E. V. Browell, S. Kinne, and J. Jordan. An analysis of lidar observations of polar stratospheric clouds. *Geophysical Research Letters*, 17(4) :393–396, 1990. doi : <https://doi.org/10.1029/GL017i004p00393>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/GL017i004p00393>.
- O. Torres, A. Tanskanen, B. Veihelmann, C. Ahn, R. Braak, P. K. Bhartia, P. Veefkind, and P. Levelt. Aerosols and surface uv products from ozone monitoring instrument observations : An overview. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D24), 2007. doi : 10.1029/2007JD008809. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2007JD008809>.
- K. Tory, W. Thurston, and J. Kepert. Thermodynamics of pyrocumulus : A conceptual study. *Monthly Weather Review*, 146(8) :2579–2598, 07 2018. ISSN 0027-0644. doi : 10.1175/MWR-D-17-0377.1. URL <https://doi.org/10.1175/MWR-D-17-0377.1>.
- I. Tritscher, J.-U. Grooß, R. Spang, M. C. Pitts, L. R. Poole, R. Müller, and M. Riese. Lagrangian simulation of ice particles and resulting dehydration in the polar winter stratosphere. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(1) : 543–563, 2019. doi : 10.5194/acp-19-543-2019. URL <https://acp.copernicus.org/articles/19/543/2019/>.
- I. Tritscher, M. C. Pitts, L. R. Poole, S. P. Alexander, F. Cairo, M. P. Chipperfield, J.-U. Grooß, M. Höpfner, A. Lambert, B. Luo, S. Molleker, A. Orr, R. Salawitch, M. Snels, R. Spang, W. Woiwode, and T. Peter. Polar stratospheric clouds : Satellite observations, processes, and role in ozone depletion. *Reviews of Geophysics*, 59(2) : e2020RG000702, 2021. doi : <https://doi.org/10.1029/2020RG000702>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2020RG000702>. e2020RG000702 2020RG000702.
- A. Tsias, M. Wirth, K. S. Carslaw, J. Biele, H. Mehrtens, J. Reichardt, C. Wedekind, V. Weiss, W. Renger, R. Neuber, U. von Zahn, B. Stein, V. Santacesaria, L. Stefanutti, F. Fierli, J. T. Bacmeister, and T. Peter. Aircraft lidar observations of an enhanced type ia polar stratospheric clouds during a-pe-polecat. *Journal of Geophysical Research*, 104 :23961–23969, 1999.
- K. Turnbull, B. Johnson, F. Marengo, J. Haywood, A. Minikin, B. Weinzierl, H. Schlager, U. Schumann, S. Leadbetter, and A. Woolley. A case study of observations of volcanic ash from the eyjafjallajökull eruption : 1. in situ airborne observations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 117(D20), 2012. doi : <https://doi.org/10.1029/2011JD016688>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2011JD016688>.
- V. S. Ulshöfer and M. O. Andrae. Carbonyl sulfide (cos) in the surface ocean and the atmospheric cos budget. *Aquatic Geochemistry*, 3(4) :283–303, 1997. doi : 10.1023/A:1009668400667. URL <https://doi.org/10.1023/A:1009668400667>.
- I. Veselovskii, Q. Hu, P. Goloub, T. Podvin, M. Korenskiy, O. Pujol, O. Dubovik, and A. Lopatin. Combined use of mie–raman and fluorescence lidar observations for improving aerosol characterization : feasibility experiment.

- Atmospheric Measurement Techniques*, 13(12) :6691–6701, 2020. doi : 10.5194/amt-13-6691-2020. URL <https://amt.copernicus.org/articles/13/6691/2020/>.
- I. Veselovskii, Q. Hu, P. Goloub, T. Podvin, B. Barchunov, and M. Korenskii. Combining mie–raman and fluorescence observations : a step forward in aerosol classification with lidar technology. *Atmospheric Measurement Techniques*, 15(16) :4881–4900, 2022. doi : 10.5194/amt-15-4881-2022. URL <https://amt.copernicus.org/articles/15/4881/2022/>.
- C. Voigt, J. Schreiner, A. Kohlmann, P. Zink, K. Mauersberger, N. Larsen, T. Deshler, C. Kröger, J. Rosen, A. Adriani, F. Cairo, G. D. Donfrancesco, M. Viterbini, J. Ovarlez, H. Ovarlez, C. David, and A. Dörnbrack. Nitric acid trihydrate (nat) in polar stratospheric clouds. *Science*, 290(5497) :1756–1758, 2000. doi : 10.1126/science.290.5497.1756. URL <https://www.science.org/doi/abs/10.1126/science.290.5497.1756>.
- C. Voigt, A. Dörnbrack, M. Wirth, S. M. Groß, M. C. Pitts, L. R. Poole, R. Baumann, B. Ehard, B.-M. Sinnhuber, W. Woiwode, and H. Oelhaf. Widespread polar stratospheric ice clouds in the 2015–2016 arctic winter – implications for ice nucleation. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(21) :15623–15641, 2018. doi : 10.5194/acp-18-15623-2018. URL <https://acp.copernicus.org/articles/18/15623/2018/>.
- U. von Zahn, G. von Cossart, J. Fiedler, K. H. Fricke, G. Nelke, G. Baumgarten, D. Rees, A. Hauchecorne, and K. Adolfsen. The alomar rayleigh/mie/raman lidar : objectives, configuration, and performance. *Annales Geophysicae*, 18(7) :815–833, 2000. doi : 10.1007/s00585-000-0815-2. URL <https://angeo.copernicus.org/articles/18/815/2000/>.
- S. M. Ward, T. Deshler, and A. Hertzog. Quasi-lagrangian measurements of nitric acid trihydrate formation over antarctica. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 119(1) :245–258, 2014. doi : <https://doi.org/10.1002/2013JD020326>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/2013JD020326>.
- E. W. Washburn. The vapor pressure of ice and of water below the freezing point. *Monthly Weather Review*, 52(10) : 488 – 490, 1924. doi : 10.1175/1520-0493(1924)52<488:TVPOIA>2.0.CO;2. URL https://journals.ametsoc.org/view/journals/mwre/52/10/1520-0493_1924_52_488_tvpoia_2_0_co_2.xml.
- J. W. Waters, L. Froidevaux, R. S. Harwood, R. F. Jarnot, H. M. Pickett, W. G. Read, P. H. Siegel, R. E. Cofield, M. J. Filipiak, D. A. Flower, J. R. Holden, G. K. Lau, N. J. Livesey, G. L. Manney, H. C. Pumphrey, M. L. Santee, D. L. Wu, D. T. Cuddy, R. R. Lay, M. S. Loo, V. S. Perun, M. J. Schwartz, P. C. Stek, R. P. Thurstans, M. A. Boyles, K. M. Chandra, M. C. Chavez, G.-S. Chen, B. V. Chudasama, R. Dodge, R. A. Fuller, M. A. Girard, J. H. Jiang, Y. Jiang, B. W. Knosp, R. C. LaBelle, J. C. Lam, K. A. Lee, D. Miller, J. E. Oswald, N. C. Patel, D. M. Pukala, O. Quintero, D. M. Scaff, W. Van Snyder, M. C. Tope, P. A. Wagner, and M. J. Walch. The earth observing system microwave limb sounder (eos mls) on the aura satellite. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 44(5) : 1075–1092, 2006. doi : 10.1109/TGRS.2006.873771.

- T. Wegner, J.-U. Grooß, M. von Hobe, F. Stroh, O. Sumińska-Ebersoldt, C. M. Volk, E. Hösen, V. Mitev, G. Shur, and R. Müller. Heterogeneous chlorine activation on stratospheric aerosols and clouds in the arctic polar vortex. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(22) :11095–11106, 2012. doi : 10.5194/acp-12-11095-2012. URL <https://acp.copernicus.org/articles/12/11095/2012/>.
- D. K. Weisenstein, G. K. Yue, M. K. W. Ko, N.-D. Sze, J. M. Rodriguez, and C. J. Scott. A two-dimensional model of sulfur species and aerosols. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 102(D11) :13019–13035, 1997. doi : <https://doi.org/10.1029/97JD00901>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/97JD00901>.
- C. Weitkamp. *Lidar*. Springer New York, NY, 2005. ISBN 9780387400754. URL <https://link.springer.com/book/10.1007/b106786>.
- D. M. Winker, M. A. Vaughan, A. Omar, Y. Hu, K. A. Powell, Z. Liu, W. H. Hunt, and S. A. Young. Overview of the calipso mission and caliop data processing algorithms. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 26(11) : 2310 – 2323, 2009. doi : 10.1175/2009JTECHA1281.1. URL https://journals.ametsoc.org/view/journals/atot/26/11/2009jtecha1281_1.xml.
- M. E. Wise, S. D. Brooks, R. M. Garland, D. J. Cziczo, S. T. Martin, and M. A. Tolbert. Solubility and freezing effects of fe²⁺ and mg²⁺ in h₂so₄ solutions representative of upper tropospheric and lower stratospheric sulfate particles. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D14), 2003. doi : <https://doi.org/10.1029/2003JD003420>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2003JD003420>.
- WMO. Scientific assessment of ozone depletion : 2018, global ozone research and monitoring project–report no. 58. Technical report, (World Meteorological Organization), Geneva, Switzerland, 2018.
- W. Woiwode, M. Höpfner, L. Bi, M. C. Pitts, L. R. Poole, H. Oelhaf, S. Molleker, S. Borrmann, M. Klingebiel, G. Belyaev, A. Ebersoldt, S. Griessbach, J.-U. Grooß, T. Gulde, M. Krämer, G. Maucher, C. Piesch, C. Rolf, C. Sartorius, R. Spang, and J. Orphal. Spectroscopic evidence of large aspherical β -nat particles involved in denitrification in the december 2011 arctic stratosphere. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(14) :9505–9532, 2016. doi : 10.5194/acp-16-9505-2016. URL <https://acp.copernicus.org/articles/16/9505/2016/>.
- J. Xu, D. Li, Z. Bai, M. Tao, and J. Bian. Large amounts of water vapor were injected into the stratosphere by the hunga tonga, hunga ha’apai volcano eruption. *Atmosphere*, 13(6), 2022. ISSN 2073-4433. doi : 10.3390/atmos13060912. URL <https://www.mdpi.com/2073-4433/13/6/912>.
- P. Yu, S. M. Davis, O. B. Toon, R. W. Portmann, C. G. Bardeen, J. E. Barnes, H. Telg, C. Maloney, and K. H. Rosenlof. Persistent stratospheric warming due to 2019–2020 australian wildfire smoke. *Geophysical Research*

Letters, 48(7) :e2021GL092609, 2021. doi : <https://doi.org/10.1029/2021GL092609>. URL <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2021GL092609>. e2021GL092609 2021GL092609.

Y. Zhang, O. R. Cooper, A. Gaudel, A. M. Thompson, P. Nédélec, S. Y. Ogino, and J. J. West. Tropospheric ozone change from 1980 to 2010 dominated by equatorward redistribution of emissions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(12) :875 – 879, 2016. doi : [10.1038/ngeo2827](https://doi.org/10.1038/ngeo2827). URL <https://doi.org/10.1038/ngeo2827>.