



Les aérosols en région arctique : origines, transport, interactions avec le rayonnement et les nuages

Jean-Christophe Raut

► To cite this version:

Jean-Christophe Raut. Les aérosols en région arctique : origines, transport, interactions avec le rayonnement et les nuages. Océan, Atmosphère. Sorbonne Université, 2020. <tel-03032635>

HAL Id: tel-03032635

<https://hal.science/tel-03032635v1>

Submitted on 1 Dec 2020

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.



HAL Authorization

Thèse présentée en vue de l'obtention du

Diplôme d'**Habilitation à Diriger les Recherches**

Sorbonne Université

par

Jean-Christophe RAUT

Les aérosols en région arctique : origines, transport,
interactions avec le rayonnement et les nuages

soutenue le 25 novembre 2020 devant le jury composé de

Marc Mallet	Rapporteur	CNRM	Toulouse
Karine Sellegri	Rapporteuse	LaMP	Clermont Ferrand
Virginie Marécal	Rapporteuse	CNRM	Toulouse
Laurent Menut	Examineur	LMD	Palaiseau
Jérôme Riedi	Examineur	LOA	Lille
Solène Turquety	Présidente	LMD	Paris

Résumé

L'atmosphère arctique, souvent perçue comme propre par le grand public, est en réalité réceptrice de la pollution transportée rapidement depuis des sources lointaines aux moyennes latitudes. Un phénomène emblématique qui la caractérise est la présence fréquente de couches d'aérosols de pollution en Arctique en hiver et au printemps, définissant la « brume arctique ». C'est une région où les sources locales de pollution croissent rapidement et vont de pair avec de nouvelles opportunités économiques d'ouverture de routes maritimes et d'exploitation de ressources naturelles.

Les populations d'aérosols en Arctique sont complexes en raison de leurs variabilités temporelle et verticale marquées et de leurs origines potentielles disparates. Les propriétés physico-chimiques des aérosols dictent leurs impacts finaux sur le rayonnement et les nuages et celles-ci dépendent des régions sources. Les sources de pollution en Arctique ainsi que les processus de transport et de vieillissement conditionnent fortement les incertitudes relatives à la compréhension et la quantification de l'impact des polluants sur l'environnement arctique. Nos études basées sur des simulations à méso-échelle et évaluées par rapport aux observations in situ ou satellitaires ont été utilisées pour quantifier le rôle des sources de pollution locales en Arctique, comme la navigation, les torchères, la combustion domestique et l'influence du transport à longue distance des polluants depuis les latitudes moyennes ou subarctiques vers l'Arctique. Les travaux publiés ont ciblé prioritairement les conditions printannières et estivales dans le secteur du Nord de l'Europe, qui est fortement influencé par les émissions des activités offshore et des bateaux, les émissions industrielles sur le continent et le chauffage domestique, ainsi que le transport à longue distance depuis les régions polluées en Europe centrale et les feux de biomasse en Asie et en Sibérie. Ils ont mis en évidence que les sources locales d'aérosols et de leurs précurseurs ainsi que leurs impacts chimiques sur l'atmosphère arctique étaient particulièrement mal quantifiées et que les masses d'air vieilles contenant des aérosols en provenance de sources de pollution distantes affectaient fortement la composition chimique, la qualité de l'air et le bilan radiatif en Arctique. L'impact relatif dépend fortement de la saison, du temps de résidence et des chemins de transport vers l'Arctique. Ces derniers sont très sensibles au passage du printemps à l'été en raison notamment des changements drastiques dans l'efficacité du lessivage humide des aérosols.

La possibilité de prédire les manifestations du changement climatique en Arctique est sérieusement mise à mal par un manque de compréhension de processus clés en Arctique, notamment ceux liés aux nuages, aux aérosols et à leurs interactions. Les questions ne se limitent pas à la manière dont la région arctique répond au changement global, mais couvrent aussi la façon dont le climat arctique est affecté par les changements en cours dans la composition atmosphérique en Arctique.

Summary

The Arctic, often perceived as pristine by the general public, is actually a receptor for pollution rapidly transported from very distant source regions at mid-latitudes. An iconic phenomenon is the widespread pollution aerosol layers appearing in the Arctic in winter and spring, the so-called « Arctic haze ». It is also a region where local pollution sources are growing with new opportunities opening up for shipping routes and exploitation of natural resources.

Arctic aerosol populations are complex due to marked temporal and vertical variability, and disparate potential origins. Chemical and physical properties dictate their ultimate impacts on radiation and clouds, and these depend on source regions. Aerosol pollution sources in the Arctic as well as transport and aging processes are major drivers of uncertainties for the understanding and quantification of pollution impact on the Arctic environment. Our studies based on mesoscale simulations and evaluated through in situ measurements and satellite observations have been used to quantify the role of local innerarctic pollution sources like shipping, flaring, domestic burning and the influence of long-range transport of pollutants from the mid to subarctic latitudes into the Arctic. The published work has mostly focused on the Arctic spring and summer conditions in the northern European sector, which is heavily influenced by emissions from offshore activities and shipping, land based domestic emissions from industry and domestic wood burning as well as long-range transport from polluted regions in central Europe and biomass burning in Asia and Siberia. We have particularly highlighted that the local sources of aerosols and their precursors, as well as their chemical impact on the Arctic atmosphere are only poorly quantified and that aged and chemically processed aerosol containing air masses from distant sources heavily affect the chemical composition, air quality and radiation budget in the Arctic. The relative impact strongly depends on the season, residence time and transport pathways to the Arctic, which are particularly sensitive to the transition from spring to summer and the associated drastic changes in the efficiency of wet removal processes.

The predictive capability of Arctic climate change is severely hampered by a lack of understanding and realistic representation of key processes and interactions within the Arctic, notably related to clouds, aerosols and their interactions. The questions are not limited to how the Arctic responds to global change, they also cover how Arctic climate is affected by on-going changes in Arctic atmospheric composition.

Table des matières

Résumé	i
Table des matières	iii
Avant-propos	1
0.1 Mon parcours de recherche avant 2009	1
0.2 Mes travaux de recherche actuels et les enjeux	2
0.3 Coordination et animation scientifique	3
0.3.1 Responsabilités dans des programmes scientifiques	3
0.3.2 Responsabilité dans des projets de modélisation numérique	3
0.3.3 Responsabilité locale	4
0.4 Enseignement et encadrement	4
0.4.1 Responsabilités en enseignement	4
0.4.2 Animation et direction d'équipes pédagogiques	4
0.4.3 Encadrement d'étudiants et post-docs	4
1 Introduction générale	5
1.1 Pourquoi s'intéresser à l'atmosphère arctique?	5
1.2 La pollution atmosphérique en Arctique	6
1.3 Le transport de polluants en Arctique	6
1.4 L'impact radiatif des polluants transportés jusqu'en Arctique	9
2 Transport de masses d'air polluées vers l'Arctique, processus de vieillissement et de dépôt	11
2.1 Les campagnes aéroportées	11
2.2 Transport des aérosols depuis l'Europe vers l'Arctique au printemps	12
2.3 Transport de panaches depuis l'Amérique du Nord en été	15
2.4 Transport de pollution au-dessus du pôle en été et processus de dépôt associés	17
2.5 Transport des panaches depuis l'Amérique du Nord au printemps	21
2.6 Conclusions du chapitre	23
3 Évaluations multi-modèles des distributions des polluants à courte durée de vie en Arctique	25
3.1 Intercomparaison POLMIP	26
3.2 Intercomparaisons ECLIPSE et AMAP	29
3.2.1 Au-dessus de l'Arctique	29
3.2.2 Au-dessus de régions sources influençant les concentrations en Arctique	33
3.3 Conclusions du chapitre	36

4	Impact des émissions anthropiques locales émergentes sur la qualité de l'air et le climat en Arctique	39
4.1	Impact des émissions issues du trafic maritime	41
4.1.1	Quantification et évaluation des émissions de bateaux	41
4.1.2	Impact du trafic maritime sur les concentrations de polluants	42
4.1.3	Impact du trafic maritime sur les dépôts acides	44
4.2	Extraction de ressources pétrolières et gazières	47
4.2.1	Effet d'un complexe gazier isolé sur le contenu en aérosols dans la basse troposphère	48
4.2.2	Quantification des émissions liées à l'extraction d'hydrocarbures et de leurs impacts	49
4.3	Conclusions du chapitre	51
5	Évaluation des effets radiatifs des aérosols et de l'ozone issus des sources locales et du transport à longue distance en Arctique	53
5.1	Améliorations du modèle pour les simulations hémisphériques	54
5.2	Contributions des sources distantes ou locales et effets radiatifs associés	57
5.3	Conclusions du chapitre	62
6	Perspectives	63
6.1	Étude des processus-clés dans la couche limite nuageuse en Arctique	64
6.1.1	Contexte et objectifs	64
6.1.2	Méthodologie	65
6.1.3	Premiers résultats	68
6.2	Interactions aérosols-nuages en Arctique	71
6.2.1	Contexte et objectifs	71
6.2.2	Méthodologie	73
6.2.3	Premiers résultats	74
	Bibliographie	79

Avant-propos

La rédaction de ce document ne répond pas seulement à un impératif statutaire, celui de la soutenance d'une Habilitation à Diriger des Recherches. Elle me permet aussi de profiter de cet exercice pour établir une synthèse de mes travaux antérieurs qui puisse servir de support de travail pour mes collègues et mes étudiants futurs. Le contenu de ce manuscrit s'appuie sur quelques résultats scientifiques auxquels j'ai contribué pendant les dix dernières années et publiés dans des revues à comité de lecture. Les recommandations actuelles de Sorbonne Université limitant le document à une synthèse, ce manuscrit ne comporte que des développements succincts : seules des idées scientifiques maîtresses, parfois elliptiques, sont discutées et le nombre de figures a été considérablement restreint. Le lecteur intéressé est invité à se référer aux articles sur lesquels il s'appuie. Après une brève introduction de contexte, le texte est composé de quatre parties plus ou moins indépendantes qui mettent l'accent sur les passerelles entre les différentes questions qui m'ont intéressé ainsi que sur les collaborations associées. Une dernière section permet de broser les perspectives de mon travail dans lesquelles je souhaite m'impliquer dans les années à venir. Le fil conducteur de ces différentes parties est la modélisation des aérosols à l'échelle de l'Arctique.

0.1 Mon parcours de recherche avant 2009

J'ai effectué ma thèse au LSCE (Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement) entre 2005 et 2008 dans le cadre de la valorisation de mesures lidar pour des applications géophysiques. J'ai ainsi développé des méthodes innovantes de restitution des caractéristiques optiques et microphysiques des aérosols par complémentarité entre plusieurs plateformes de mesure en atmosphère urbaine (RAUT et CHAZETTE, 2007 ; RAUT et CHAZETTE, 2008b), en région sahélienne (RAUT et CHAZETTE, 2008a) mais aussi dans le métro parisien (RAUT et al., 2009a ; RAUT et al., 2009b). J'ai participé à l'évaluation de la variabilité spatiale et surtout verticale des propriétés des couches d'aérosols en fonction de leur provenance géographique, du vieillissement et de leur état de mélange. Ces déterminations m'ont ainsi permis d'évaluer les impacts radiatifs engendrés par la superposition de couches d'aérosols aux propriétés microphysiques et optiques variées, en région urbaine (contribution anthropique) (RAUT et CHAZETTE, 2008b) et en Afrique de l'Ouest (poussières désertiques et feux de biomasse) (RAUT et CHAZETTE, 2008a). J'ai ensuite effectué une année de post-doctorat au LMD (Laboratoire de Météorologie Dynamique) où j'ai poursuivi ces études en mettant en place une approche permettant d'estimer les concentrations massiques des aérosols à partir de mesures lidar mobiles (RAUT et CHAZETTE, 2009).

0.2 Mes travaux de recherche actuels et les enjeux

J'effectue mes recherches au LATMOS (Laboratoire ATmosphères, Milieux, Observations Spatiales) dans l'équipe TROPO, basée sur le campus Pierre et Marie Curie de Sorbonne Université à Paris où je suis maître de conférences depuis septembre 2009. Mon recrutement a constitué une inflexion notable dans ma carrière sur le plan méthodologique mais aussi d'un point de vue thématique. Mes activités précédentes étaient essentiellement basées sur l'analyse de données de campagnes de terrain dans lesquelles j'avais pu m'impliquer : LISAIR 2005 (RAUT et CHAZETTE, 2007; RAUT et CHAZETTE, 2008b), MAGENTA 2006 (RAUT et al., 2009a; RAUT et al., 2009b), PARISFOG 2006-2007 (ELIAS et al., 2009; HAEFFELIN et al., 2010), EM25 2009 (McMEEKING et al., 2012), MEGA-POLI 2009 (ROYER et al., 2010). Et celles-ci étaient essentiellement orientées sur des études dédiées aux masses d'air polluées.

Je m'intéresse désormais essentiellement à une région dont l'atmosphère est réputée beaucoup plus propre dans l'esprit du grand public, l'Arctique. L'objectif de mes travaux de recherche est de contribuer à une meilleure compréhension des processus de transport, de vieillissement, de dépôt des polluants à courte durée de vie, en particulier des aérosols, vers la région arctique, ainsi que de leurs propriétés et leur rôle dans le climat arctique et son évolution. Ces polluants sont issus des sources locales et du transport à longue distance en Arctique. Du point de vue méthodologique, j'ai abordé ces questions grâce à la modélisation numérique couplée de chimie-transport à mésoéchelle à l'aide du modèle Weather Research and Forecasting with Chemistry (WRF-Chem, GRELL et al. (2005)). Une attention particulière est portée aux mécanismes de transport des aérosols en Arctique depuis les zones sources (Europe, Amérique du Nord, Asie) car les modèles rencontrent fréquemment des difficultés à reproduire la distribution verticale observée ainsi que le vieillissement des masses d'air. Depuis les nombreuses campagnes de mesures effectuées dans le cadre de l'Année Polaire Internationale en 2007-2008, en particulier au sein du programme POLARCAT (POLar study using Aircraft, Remote sensing, surface measurements and models, of Climate chemistry, Aerosols and Transport), les sources d'aérosols sont désormais mieux connues. Mais la quantification des forçages direct et indirect des aérosols en Arctique est toujours associée à une grande incertitude, et particulièrement la contribution des sources anthropiques dans ces forçages. Le travail porte principalement sur la modélisation de cas d'études spécifiques, souvent observés pendant les campagnes de mesures effectuées dans le cadre des programmes POLARCAT, ACCESS (Arctic Climate Change, Economy and Society), PARCS (Pollution in the Arctic System) au printemps ou en été. Les simulations portant sur le transport des aérosols, leur état de mélange et leur vieillissement sont comparées aux mesures in situ recueillies à bord des avions de recherche impliqués dans ces campagnes et aux observations spatiales, notamment CALIPSO (Cloud Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations, (S.-W. KIM et al., 2008; WINKER et al., 2013)). Les études peuvent aussi parfois s'intégrer dans des exercices de modélisation plus vastes, coordonnés internationalement, auxquels j'ai participé. Ce document relate mes travaux de recherche portant sur la zone arctique sur les dix dernières années, c'est-à-dire depuis mon recrutement à Sorbonne Université.

Certains de mes travaux m'ont amené à travailler sur d'autres régions que l'Arctique. Ceux publiés notamment entre 2010 et 2012 sont dans la continuité de mes travaux antérieurs de thèse et de post-doctorat : distributions verticales des propriétés optiques des aérosols (HAEFFELIN et al., 2010;

CHAZETTE et al., 2010; ROYER et al., 2010), impact radiatif de structures multi-couches d'aérosols en Afrique de l'Ouest (LEMAITRE et al., 2010), restitution des distributions verticales des concentrations massiques d'aérosols en zone urbaine (ROYER et al., 2011; McMEEKING et al., 2012) et dans les panaches volcaniques (CHAZETTE et al., 2012). J'ai aussi pu contribuer à l'évaluation des schémas de couche limite atmosphérique (CLA) en zone urbaine (Y. KIM et al., 2013; Y. KIM et al., 2015), à la simulation de la production d'ozone et d'aérosols pendant le transport de panaches pollués en Méditerranée (SAFIEDDINE et al., 2014; DI BIAGIO et al., 2015), ainsi qu'à l'évaluation des performances des modèles pour la restitution des profils verticaux de vapeur d'eau en Méditerranée (CHAZETTE et al., 2016b; CHAZETTE et al., 2016a). Dans un souci de cohérence et de concision, ces études ne seront pourtant pas abordées dans ce travail de synthèse. L'accent est porté sur la région arctique et les articles publiés entre 2013 et 2018.

0.3 Coordination et animation scientifique

0.3.1 Responsabilités dans des programmes scientifiques

J'ai pris des responsabilités dans des projets de recherche liés aux activités en Arctique. En particulier j'ai été responsable d'un Work Package (WP) dédié aux activités de modélisation au sein du projet CLIMSLIP (CLIMate impacts of Short-Lived Pollutants in the polar region) piloté par Gérard Ancellet et Kathy Law et financé par l'ANR entre 2012 et 2014. J'ai également été en charge d'un WP dédié aux interactions aérosols-nuages dans le cadre du projet PARCS porté par Kathy Law et financé par le Chantier Arctique entre 2016 et 2018. J'ai, de plus, été impliqué dans de nombreux projets français et internationaux. Citons notamment les projets européens ACCESS entre 2012 et 2015, ECLIPSE (Evaluating The Climate and Air Quality Impacts of Short-Lived Pollutants) entre 2012 et 2014, ICE-ARC (Ice, Climate, Economics, Arctic Research on Change) entre 2015 et 2017, mais aussi l'EQUIPEX IAOOS (Ice-Atmosphere-Arctic Ocean Observing System) depuis 2011, le projet CNES EECLAT (Expecting Earth-Care, Learning from A-Train) depuis 2018, le projet ERA-PLANET iCUPE (Integrative and Comprehensive Understanding on Polar Environments) depuis 2017 et les projets LEFE-CHAT et IPEV ALPACA (Alaskan Layered Pollution And Chemical Analysis). J'ai porté également en 2018 deux petits projets (OVSQ et Emergence SPU) permettant de financer des instruments dédiés à l'étude de la pollution en Arctique.

0.3.2 Responsabilité dans des projets de modélisation numérique

Je suis porteur scientifique depuis 2013 d'un projet de simulation numérique sur les calculateurs de l'IDRIS, intitulé « Impact régional de la chimie atmosphérique et des aérosols sur la qualité de l'air et le climat en Arctique et en Eurasie ». Il implique chaque année une dizaine de personnes et a permis de conduire la plupart des simulations réalisées avec WRF-Chem au LATMOS.

0.3.3 Responsabilité locale

Entre 2014 et 2017, j'ai été membre du comité de pilotage du Pôle CER (Climats et Environnements Régionaux) de l'IPSL (Institut Pierre Simon Laplace). J'étais en charge de l'animation des travaux en lien avec la zone arctique. Je suis désormais membre du comité d'organisation du thème « Évolution du cycle de l'eau de la région Arctique » de l'EUR IPSL.

0.4 Enseignement et encadrement

0.4.1 Responsabilités en enseignement

Je suis responsable du parcours de master SPE (Sciences et Politiques de l'Environnement), co-accrédité par Sorbonne Université et par SciencesPo. Depuis 2017, je représente la section 37 au comité de gestion des temps de service au sein de l'UFR TEB (Terre, Environnement, Biodiversité). Je suis de plus élu depuis 2018 au conseil des enseignements du département de Master SDUEE (Sciences de l'Univers, Environnement, Écologie) de Sorbonne Université. De 2011 à 2015, j'ai été membre du comité d'experts de la section 37 de Sorbonne Université, au sein duquel j'ai été amené à participer aux sélections de dossiers ATER et ai été membre de trois jurys de recrutement MCF.

0.4.2 Animation et direction d'équipes pédagogiques

Je m'implique régulièrement dans la responsabilité d'UE des UFR de physique et TEB. Au niveau licence, je suis actuellement responsable de deux UE de L3, en « hydrodynamique » (physique à distance) et en « physique des milieux continus ». Au niveau master, j'ai contribué à mettre en place en 2013 et ai été responsable jusqu'en 2016 d'une UE de M1 du parcours SPE intitulée « Méthodes mathématiques et modélisation ». Je suis responsable de l'UE de M2 « Énergie-Environnement » et co-reponsable avec Hélène Chepfer de l'UE de M2 « Clouds and aerosols physics and precipitations » de la mention SOAC (Sciences de l'Océan, de l'Atmosphère et du Climat).

0.4.3 Encadrement d'étudiants et post-docs

Sans l'encadrement d'étudiants et la participation aux travaux de jeunes post-doctorants, le travail que je présente dans ce manuscrit n'aurait pas été aussi riche ni aussi diversifié. J'ai participé à l'encadrement d'étudiants de licence (Christelle Kadi, SU, 2010; Chloée de la Vega, SU, 2010; Mathilde Crabot, ENS-Ulm, 2011) et de master (Lucien Blanc, ECP, 2010; Yvonnick Banchieri, ECP, 2010; Louis Marelle, SU, 2012; Thomas Vernaudo, SU, 2014; Lilian Loyer, SU, 2017; Cécile Carton, SU, 2018; Lilian Loyer, SU, 2018; Olivier Lemoine, UQAM, 2018-2019; Julia Maillard, ENPC, 2019). J'ai, de manière substantielle, participé à l'encadrement des thèses de doctorat de Louis Marelle (SU, 2013–2016), Sétigui Keita (UQAM, 2015–2019), Lilian Loyer (2018–), Julia Maillard (2019–) et aux travaux post-doctoraux de Jennie Thomas (2010–2013), Boris Quennehen (2012–2015), Yoann Long (2014–2014), Paolo Tuccella (2013–2015) et Nikos Daskalakis (2015–2017).

Introduction générale

1.1 Pourquoi s'intéresser à l'atmosphère arctique ?

Nulle part sur Terre les effets du changement climatique ne se font plus ressentir qu'en Arctique, suscitant un intérêt grandissant pour l'étude de son atmosphère. En un siècle, les températures moyennes ont augmenté deux à trois fois plus rapidement au-dessus de la région arctique que sur le reste de la planète (IPCC, 2013). Cette augmentation s'accompagne également d'une fonte accélérée des glaces de mer d'été à un rythme moyen de -13% par décennie, et la superficie de la banquise a atteint minimum historique en septembre 2012. Ce changement climatique en Arctique est piloté notamment par le réchauffement global lié aux gaz à effet de serre, le transport de chaleur depuis les moyennes latitudes et le couplage océan-glace-atmosphère (SHINDELL, 2007). Mais d'autres processus comme le transport à longue distance de polluants à courte durée de vie comme les aérosols et certains gaz traces, dont l'ozone (O_3) et le méthane (CH_4), depuis les moyennes latitudes jouent également un rôle fondamental dans ces changements. Ces polluants à courte durée de vie constituent un levier possible pour la réduction du réchauffement climatique en Arctique (carbone suie, précurseurs de l'ozone...). Pour comprendre l'évolution du climat en Arctique, ainsi que les influences anthropiques sur l'environnement et la qualité de l'air dans cette région, il est nécessaire de connaître et de quantifier les processus de transport de polluants vers les hautes latitudes. Cependant, les processus liés aux aérosols, et en particulier leur transport vers l'Arctique, ne sont pas bien représentés dans les modèles chimie-climat globaux et doivent être améliorés (KOCH et al., 2009).

1.2 La pollution atmosphérique en Arctique

La pollution atmosphérique en Arctique est différente de celle des moyennes latitudes par sa composition, sa variabilité saisonnière et en raison de la grande sensibilité climatique des régions arctiques. L'atmosphère arctique a longtemps été considérée comme particulièrement propre. Dans les années cinquante, des pilotes d'avion survolant l'Arctique ont néanmoins observé pour la première fois une réduction de visibilité significative au printemps au-dessus de l'Arctique (GREENAWAY, 1950; MITCHELL, 1957). L'analyse de ce phénomène, ultérieurement nommé « brume arctique », a révélé une origine anthropique (RAHN et al., 1977). La brume arctique est composée d'aérosols, principalement des sulfates, des composés organiques et du carbone suie (BC), mais aussi d'autres substances comme des poussières minérales, des nitrates, ou de l'ammonium (QUINN et al., 2007). La brume arctique contient également des niveaux élevés de monoxyde de carbone (CO), d'oxydes d'azote (NO_x) et de Composés Organiques Volatils (COV) (SOLBERG et al., 1996). Les séries temporelles de mesures de concentrations massiques d'aérosols en surface font clairement apparaître une variabilité saisonnière très marquée avec un pic de concentration en polluants entre la fin de l'hiver et le début du printemps (Figure 1.1). Cette évolution est caractéristique des niveaux de pollution de fond en Arctique qui définissent la brume arctique. La troposphère arctique est également traversée de manière épisodique par des panaches localisées qui participent, eux aussi, à la pollution en région arctique (BROCK et al., 2011).

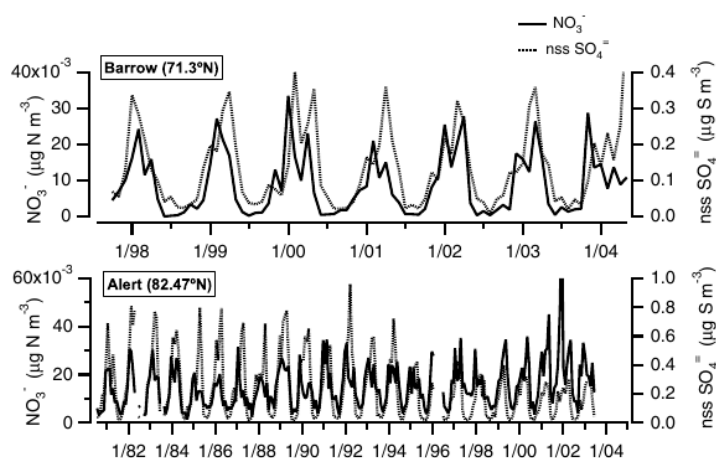


FIGURE 1.1 Séries temporelles des concentrations en moyenne mensuelle de sulfate et de nitrate à Barrow, Alaska (a) et Alert, Canada (b). Source : QUINN et al. (2007).

1.3 Le transport de polluants en Arctique

QUINN et al. (2007) puis TUNVED et al. (2013) ont souligné la complexité des sources d'aérosols en Arctique. Le transport depuis les moyennes latitudes d'aérosols continentaux et de précurseurs gazeux vers l'Arctique s'intensifie en hiver et au printemps. Pendant cette période, une augmentation brutale des concentrations en sulfates, nitrates, aérosols de feux de biomasse (K^+ , organiques), BC et poussières minérales (Ca^{2+} , Mg^{2+}) est observée. Le MSA (acide méthylsulfonique) issu de l'oxydation du DMS (sulfure de diméthyle) d'origine biogénique présente des pics de concentration en mai à cause du transport à longue distance et de la production locale lorsque la glace se

retire. Les concentrations de sels de mer submicroniques sont maximales pendant l'hiver à cause de vents forts dans les régions sources aux hautes latitudes et le transport à longue distance en Arctique. En revanche, les concentrations de sels de mer supermicroniques produits localement sont maximales pendant l'été quand l'étendue de la glace de mer est à son minimum.

En Arctique, les sources locales de pollution, c'est-à-dire limitées aux environs du cercle arctique, sont encore relativement faibles (LAW et STOHL, 2007). Elles consistent principalement en des sources anthropiques de quelques zones urbanisées dont la ville de Mourmansk, des émissions industrielles au nord de la Russie, en particulier de soufre, originaires de la Péninsule de Kola et de Norilsk en Sibérie (VIRKKULA et al., 1997; PRANK et al., 2010; WALTER et al., 2012; BAUDUIN et al., 2014), ainsi que des émissions liées au trafic maritime (CORBETT et al., 2010) et à l'extraction de pétrole et de gaz (G. P. PETERS et al., 2011). La plupart des polluants affectant l'Arctique sont issus du transport depuis les moyennes latitudes (STOHL, 2006). En combinant les résultats issus de différents modèles, SHINDELL et al. (2008) ont estimé la contribution relative des émissions anthropiques de quatre régions sources (Europe, Asie du Sud, Asie de l'Est, Amérique du Nord) sur les concentrations de polluants (BC, sulfates, CO et ozone) rencontrées en Arctique (Figure 1.2). Les concentrations de surface des polluants autres que l'ozone sont ainsi majoritairement influencées par les émissions européennes, notamment en hiver et au printemps. En revanche, l'influence des émissions asiatiques devient prépondérante dans la haute troposphère (250 hPa). A l'inverse, ce sont les émissions Nord-américaines qui semblent piloter les concentrations d'ozone en Arctique.

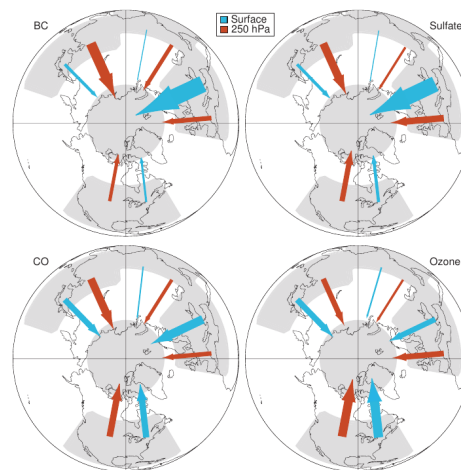


FIGURE 1.2 Importance relative des différentes régions (Europe, Asie Centrale, Est asiatique, Amérique du Nord) à la concentration anthropique moyenne annuelle à la surface (bleu) et dans la haute troposphère (250 hPa, rouge) en Arctique pour les espèces indiquées. Source : SHINDELL et al. (2008).

L'influence prépondérante des émissions européennes sur les concentrations de surface en Arctique s'explique par la position du front arctique, dôme formé par des surfaces d'égale température potentielle et qui isole partiellement la basse troposphère arctique du reste de l'atmosphère (KLONECKI et al., 2003; STOHL, 2006). Celui-ci impose un mouvement ascendant aux parcelles d'air venant du Sud. L'isolement relatif de l'air arctique signifie que les sources aux hautes latitudes conditionnent de manière prioritaire les contenus particuliers en Arctique (Figure 1.3). En hiver et jusqu'au début du printemps, l'extension du front polaire vers le sud, jusqu'à 40°N au-dessus de l'Europe, facilite l'injection directe des émissions anthropiques européennes dans la basse et moyenne troposphère arctique (Figure 1.4). Cela explique en grande partie le phéno-

mène de brume arctique au printemps. Les masses d'air provenant de la côte Est de l'Asie et de l'Amérique du Nord sont trop chaudes et humides pour franchir le front polaire, mais peuvent être transportées dans la moyenne et haute troposphère arctique (STOHL, 2006). Les circulations atmosphériques sont modifiées en été : les feux de forêt boréaux et agricoles, prenant leurs sources à des latitudes suffisamment élevées (Canada, Alaska, Nord de la Russie) peuvent être transportés facilement en Arctique (WARNEKE et al., 2009; JACOB et al., 2010; BROCK et al., 2011; THOMAS et al., 2013; LAW et al., 2014).

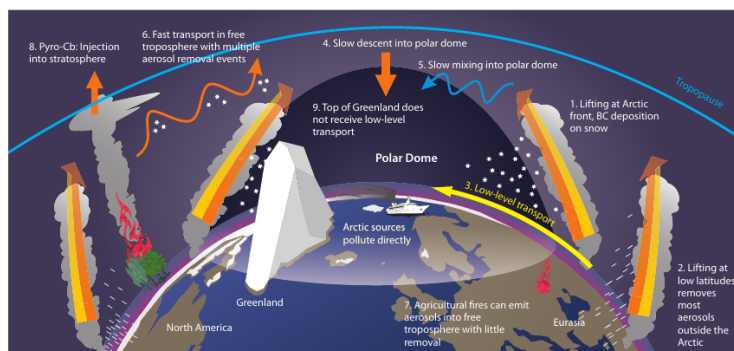


FIGURE 1.3 Processus principaux responsables du transport de polluants traces en Arctique. Adapté de STOHL (2006) et AMAP (2015).



FIGURE 1.4 Position moyenne de la masse d'air arctique en janvier et juillet (d'après LI et al. (1993)), et fréquence des chemins principaux de transport vers le Pôle (d'après IVERSEN (1996)).

La distribution saisonnière de la concentration en nombre des aérosols est bimodale (Figure 1.5). Pendant la période de brume arctique, la précipitation et par conséquent le lessivage humide sont à leur minimum, ce qui se traduit par un transport efficace des polluants en Arctique. Bien que la période de brume arctique soit en partie ensoleillée, le puits de condensation constitué par la grande concentration d'aérosols préexistants empêche les processus de nucléation et de croissance. À l'arrivée de l'été, les zones sources sont modifiées et la quantité de précipitation augmente, ce qui engendre une faible concentration en masse et en surface des particules. Paradoxalement, le nombre de particules semble pourtant être régénéré quand la précipitation devient plus intense (Figure 1.5). En effet, la faible concentration des particules du mode d'accumulation, responsable

d'un faible puits de condensation, combinée à une activité photochimique maximale favorisent la formation de nouvelles particules par nucléation, et la population d'aérosols est dominée par un relativement grand nombre de petites particules (TUNVED et al., 2013). À la fin de l'été, l'intensité du rayonnement décroît et, malgré la faible concentration de grosses particules, la formation de nouvelles particules s'interrompt car la production de vapeur de nucléation est trop lente. Cette situation persiste et progresse le reste de l'année (octobre-février). Les trajectoires des masses d'air sont de moins en moins affectées par le lessivage humide pendant le transport vers l'Arctique, ce qui se traduit par une augmentation de la concentration massique des aérosols. L'effet combiné des sources et des puits en termes de dépôt humide contribue à la formation d'une nouvelle brume arctique et le cycle se répète.

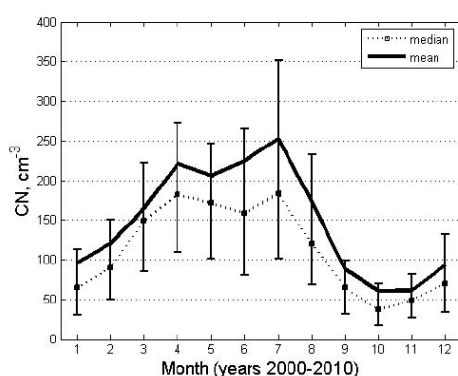
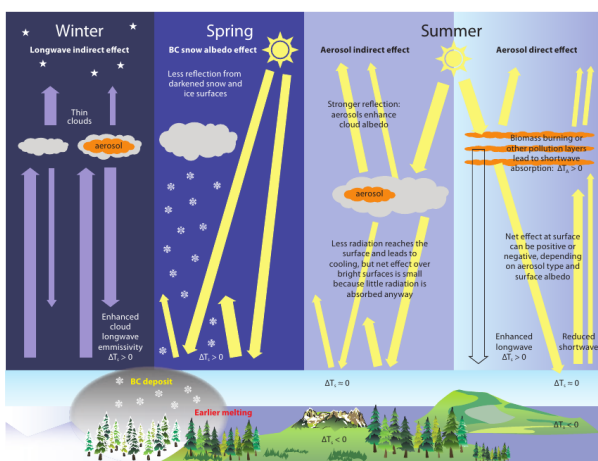


FIGURE 1.5 Variation annuelle de la médiane et de la moyenne de la concentration en nombre mesurée entre mars 2000 et mars 2010 au Mt. Zeppelin, Svalbard. Les barres d'erreur représentent l'étendue interquartile. Source : TUNVED et al. (2013)

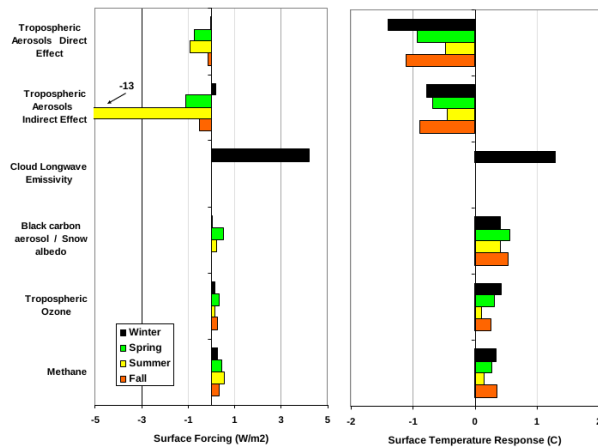
1.4 L'impact radiatif des polluants transportés jusqu'en Arctique

La description des impacts radiatifs principaux des polluants à courte durée de vie en Arctique et une estimation des forçages radiatifs associés sont résumées en Figure 1.6. En raison de leur absorptivité dans l'infrarouge, l'ozone troposphérique et le méthane jouent un rôle significatif dans le réchauffement saisonnier (automne, hiver et printemps) en Arctique (SHINDELL et al., 2006). Les interactions des aérosols avec le rayonnement sont plus complexes. De manière directe, certaines particules comme les suies absorbent le rayonnement et le réémettent dans l'atmosphère sous forme de chaleur (ÅNGSTRÖM, 1929 ; HAYWOOD et SHINE, 1995). Certaines particules à l'inverse sont susceptibles de refroidir l'atmosphère en diffusant le rayonnement solaire (« shortwave » : SW) incident vers l'espace (CHARLSON et al., 1992). À ces effets directs est généralement associé un forçage radiatif moyen négatif. Mais, au-dessus des surfaces de neige et de glace présentant un fort albédo, comme c'est le cas en Arctique, même de très petites quantités de composés absorbants (comme le BC) mélangés au sein d'aérosols majoritairement diffusants conduiront à un réchauffement à des altitudes au-dessus et au sein de la couche d'aérosols. L'effet direct n'est cependant pas l'effet dominant des aérosols en Arctique. En jouant le rôle de noyau de condensation (Cloud Condensation nuclei, CCN) ou de noyau glaçogène (Ice Nuclei, IN), les aérosols perturbent les propriétés microphysiques des nuages (concentration en nombre et taille des gouttelettes et des cristaux), ce qui affecte la couverture nuageuse (TWOMEY, 1974), l'albédo des nuages (TWOMEY,

1977), la précipitation (ALBRECHT, 1989) et la durée de vie des nuages (ROSENFELD, 1999; ROSENFELD, 2000). De ces effets dits indirects résulte un forçage radiatif globalement négatif (PRUPPACHER et KLETT, 2012). En Arctique, un effet indirect important résulte de la modification de l'émissivité des nuages bas en raison des aérosols de la brume arctique. Une diminution du rayon effectif des gouttelettes dans des nuages optiquement fins conduira à augmenter l'épaisseur optique infrarouge (CURRY et HERMAN, 1985; T. J. GARRETT et al., 2002), donc les flux infrarouges (ou plus généralement « longwave » : LW) descendants depuis les nuages, entraînant un forçage positif important (T. J. GARRETT et ZHAO, 2006) et augmentant le taux de fonte du pack de neige au printemps (T. ZHANG et al., 1996). La notion d'effet semi-direct des aérosols est utilisée pour parler de l'influence des aérosols sur le cycle de vie des nuages en modifiant les profils de température atmosphérique et d'humidité (HANSEN et al., 1997) et via l'évaporation accélérée des gouttes d'eau nuageuses ayant condensé sur un CCN absorbant le rayonnement solaire (A. S. ACKERMAN et al., 2000). L'effet de ce forçage est positif. L'impact du dépôt de suie sur les surfaces de neige ou de glace est propre aux régions polaires. Il entraîne une diminution de l'albédo de surface et un forçage positif (WARREN et WISCOMBE, 1980; M. G. FLANNER et al., 2007; BOND et al., 2013), susceptible d'être amplifié par les rétroactions de l'albédo de la neige.



(a) Variations saisonnières dans les mécanismes de forçages radiatifs en Arctique dus aux aérosols. Source : AMAP (2015).



(b) Moyennes saisonnières de forçage radiatif et de réponse en température de surface pour les régions comprises entre 60° et 90°N en fonction de saisons. Source : QUINN et al. (2008).

FIGURE 1.6 Forçages radiatifs en Arctique.

Transport de masses d'air polluées vers l'Arctique, processus de vieillissement et de dépôt

Cette section s'appuie sur les travaux publiés dans THOMAS et al. (2013), MARELLE et al. (2015), RAUT et al. (2017), THOMAS et al. (2017), CHAZETTE et al. (2018) et TOTEMS et al. (2019).

Les processus physico-chimiques aux hautes latitudes sont fortement influencés par les émissions anthropiques et naturelles transportées jusqu'en Arctique. En raison du rôle fondamental de l'Arctique sur le climat, la compréhension des processus d'émission, de transformation et de transport de polluants est cruciale (LAW et STOHL, 2007). Nous nous intéressons ici à l'émission et au transport de pollution anthropique ou issue des feux de forêts boréaux à différentes saisons. Pour étudier la production d'aérosols et de précurseurs gazeux pendant le transport de panaches pollués vers l'Arctique, nous nous appuyons sur des simulations numériques à l'aide du modèle de chimie-transport régional WRF-Chem, dont les performances sont évaluées à l'aide d'observations in situ, de mesures effectuées pendant des campagnes aéroportées et d'observations satellitaires. Les résultats permettent d'interpréter les mesures réalisées dans le cadre des campagnes POLARCAT, ACCESS ou PARCS et de comprendre les processus à l'œuvre pendant le transport des panaches pollués à plus grande échelle.

2.1 Les campagnes aéroportées

Le programme POLARCAT s'est appuyé sur plusieurs campagnes de mesures aéroportées au printemps et en été 2008 : les campagnes américaines NASA ARCTAS (Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites) et NOAA ARCPAC (Aerosol, Radiation, and Cloud Processes affecting Arctic Climate), la campagne russe YAK AEROSIB (Airborne Extensive Regular Observations Over Siberia), la campagne allemande POLARCAT-GRACE (Greenland Aerosol and Chemistry Experiment) et la campagne française POLARCAT-France. Cette dernière s'est déroulée en avril et juillet 2008 à partir de Kiruna en Suède (68°N, 20°E) et Kangerlussuaq au Groenland (67°N, 50°W). Les traces des vols de ces campagnes sont présentées sur la Figure 2.1.

ROIGER et al. (2015) ont donné un aperçu de la campagne aéroportée ACCESS. La campagne était basée à Andenes en Norvège (69.3°N, 16.1°E) en juillet 2012 et a comporté 14 vols le long de la côte du Nord-Ouest de la Norvège en utilisant l'avion de recherche Falcon-20 du DLR allemand, équipé avec un ensemble instrumenté dédié à la mesure des gaz traces et des aérosols (BC, O₃, et d'autres espèces traces). La plupart des vols étaient destinés à étudier les impacts des sources locales de pollution (bateaux, extraction de pétrole et de gaz) sur la composition atmosphérique

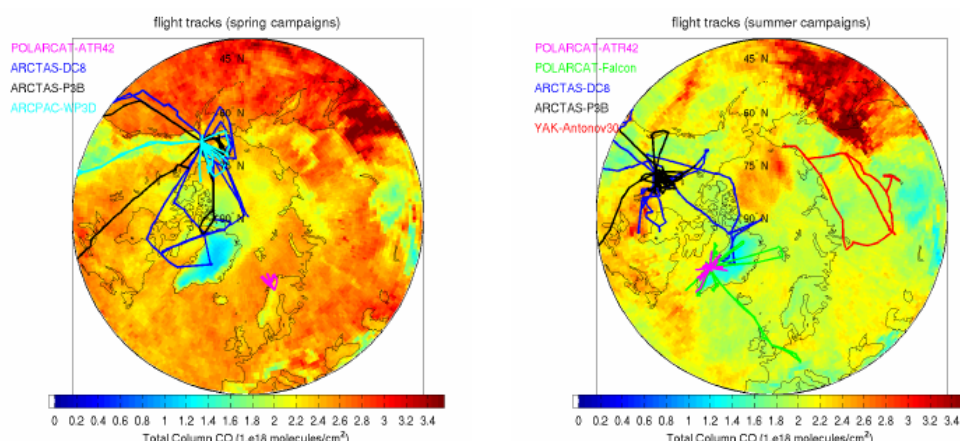


FIGURE 2.1 Traces des vols réalisés pendant le programme POLARCAT au printemps (gauche) et en été (droite) superposés sur le contenu intégré en CO mesuré par IASI en moyenne sur avril et juillet 2008. Source : POMMIER et al. (2010).

en Arctique (chapitre 4), mais la pollution émise depuis les sources lointaines a également été mesurée au cours de vols spécifiques dans la haute et moyenne troposphère (ROIGER et al., 2015).

Dans le cadre du Chantier Arctique français, le projet PARCS a été mis en place pour améliorer notre compréhension de la pollution, et en particulier des aérosols, dans la troposphère arctique. Une campagne innovante a été réalisée entre les 13 et 26 mai 2016 dans la région d'Hammerfest (70°39'N, 23°41'E) en Norvège, à 90 km au Sud-Ouest du Cap-Nord (CHAZETTE et al., 2018; TOTEMS et al., 2019). Des observations lidar à partir d'une station au sol et de vols aéroportés (ULM) ont été réalisées. Nous avons effectué un total de 14 vols pendant la campagne, la majorité d'entre eux étant réalisés au voisinage de l'aéroport, autour de la péninsule d'Hammerfest. Parmi eux, quatre vols étaient particulièrement utiles pour la détection des couches d'aérosols.

2.2 Transport des aérosols depuis l'Europe vers l'Arctique au printemps

C'est en hiver et au début du printemps que l'atmosphère arctique est la plus sensible aux émissions des moyennes latitudes, particulièrement aux émissions dans la moitié Nord de l'Europe (HIRDMAN et al., 2010). À l'occasion des campagnes ARCPAC et ARCTAS, FISHER et al. (2010) ont montré une influence majoritaire des émissions anthropiques asiatiques sur la pollution en Arctique au printemps 2008, en grande partie conditionnée par El Niño, à l'exception de la pollution en surface où les émissions européennes avaient une influence équivalente. Les feux de forêts sibériens et les feux agricoles eurasiens (russes, ukrainiens et kazakhs) ont été identifiés comme une source majeure des aérosols en Arctique au printemps (WARNEKE et al., 2009). BROCK et al. (2011) suggèrent également que le phénomène de brume arctique correspond à l'association des émissions de combustion (anthropiques et biomasse) avec la diminution de la destruction photochimique et la baisse d'efficacité des processus de dépôt.

Dans le cadre de la campagne POLARCAT-France, ADAM DE VILLIERS et al. (2010) ont mis en évidence le rôle des émissions européennes et des feux de biomasse asiatiques sur les niveaux de pollution en Scandinavie au printemps, souligné l'influence du dépôt des plus grosses particules du mode d'accumulation le long du transport depuis les zones sources, et identifié la présence de poussières désertiques dans les panaches anthropiques asiatiques dans la troposphère libre.

Le rôle prépondérant des sources européennes sur les panaches de pollution mesurés lors de la campagne POLARCAT-France de printemps a bien été mis en évidence (QUENNEHEN et al., 2012), mais le transport de pollution depuis l'Europe n'a pas été explicitement étudié, ce qui a motivé le sujet de notre étude. Pendant les trois derniers vols de la campagne les 9, 10 et 11 avril 2008, des panaches issus de feux de biomasse en Russie et en Europe de l'est, ainsi que des panaches d'origine européenne anthropique contenant des aérosols ont été identifiés sur les mesures à bord l'avion français ATR-42. Des panaches asiatiques transportés au-dessus du pôle et des masses d'air arctiques moins polluées ont également été traversés (QUENNEHEN et al., 2012; ADAM DE VILLIERS et al., 2010; POMMIER et al., 2010).

Il est donc apparu important de chercher à évaluer quantitativement si le modèle WRF-Chem était à même de reproduire ces événements de transport et les niveaux de pollution d'origine eurasiennne en Arctique. Nous avons cherché en particulier à représenter à l'aide du modèle les panaches observés à l'occasion de la campagne POLARCAT-France de printemps, leurs localisations, leur composition chimique et leurs concentrations en particules. Nous nous sommes aussi intéressés à l'identification des régions sources ayant affecté l'atmosphère arctique pendant la campagne. Des études passées avaient aussi indiqué que le vieillissement des panaches au cours de leur transport, impliquant notamment le lessivage humide, était un facteur important contrôlant la pollution en Arctique (SCHWARZ et al., 2010; BROWSE et al., 2012). En combinant des simulations WRF-Chem et des mesures de la campagne POLARCAT-France, nous avons cherché à documenter de manière plus détaillée le transport de polluants depuis l'Europe vers l'Arctique au printemps 2008, et le vieillissement des polluants pendant ce transport.

Nous avons mis en évidence que le modèle était capable de reproduire un événement de transport à longue distance depuis l'Europe vers l'Arctique. Le modèle a été évalué à la fois au-dessus des régions sources en Europe et en Arctique en termes de concentrations en aérosols, localisation des panaches et quantification de leurs propriétés optiques, suggérant un bon accord (Figure 2.2) à deux exceptions près. D'abord, le modèle semble sous-estimer les concentrations en aérosols organiques (OA) et surestimer celles en nitrates (NO_3^-) aux moyennes latitudes et en Arctique. Ensuite, la comparaison des résultats du modèle aux mesures in situ de distribution en taille et aux observations lidar a souligné que le modèle sous-estimait la croissance de l'aérosol dans certains panaches de feux de biomasse âgés, échantillonnés en altitude (4 km). Ces deux exceptions peuvent être expliquées par le manque de formation d'aérosols organiques secondaires (SOA) dans les simulations, puisque des études récentes indiquent que les émissions de feux de biomasse sont une source globale importante de SOA (SHRIVASTAVA et al., 2015). Les SOA peuvent être formés par l'oxydation des COVs par le nitrate gazeux, ce qui pourrait aussi expliquer en partie la surestimation du NO_3^- . Ces résultats nous ont poussés à inclure un mécanisme de formation des SOA dans les simulations futures.

Cette étude a aussi aidé à comprendre que l'événement de transport observé pendant la campagne POLARCAT-France de printemps impliquait un mélange de sources (émissions anthropiques, feux de biomasse), de régions émettrices (Europe centrale, Ouest de l'Asie) et de chemins de transport (transport rapide à haute altitude, et plus lent en basse couche) (Figure 2.3). En combinant les modèles eulérien WRF-Chem et lagrangien FLEXPART-WRF, nous avons ainsi trouvé que, pendant la campagne, l'avion de recherche avait échantillonné deux types de panaches européens :

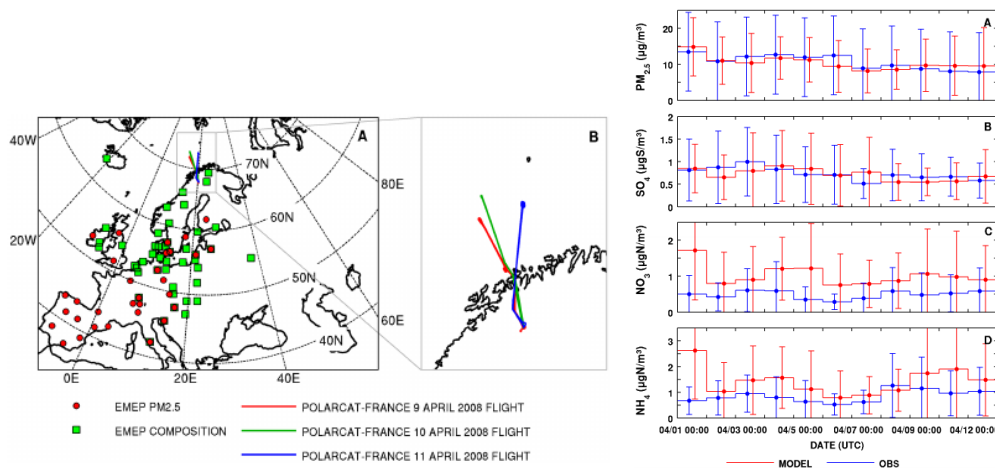


FIGURE 2.2 Domaine WRF-Chem incluant la localisation des stations de mesures EMEP et les traces des vols de la campagne POLARCAT-France au printemps (gauche) : concentrations massiques en moyenne journalière observées aux stations EMEP (bleu) et simulées par WRF-Chem aux positions des stations (rouge) (droite). Source : MARELLE et al. (2015).

d'une part des panaches mélangeant émissions anthropiques et de feux depuis l'Est de l'Europe et la Russie et transportés en dessous de 2 km, et d'autre part des panaches anthropiques depuis l'Europe centrale soulevés par des systèmes frontaux, via les circulations dans les WCB (Warm Conveyor Belt) à 5 – 6 km. Les types de panaches ainsi modélisés ont subi un lessivage humide important pendant le transport, responsable d'une chute supérieure à 50% dans les concentrations particulières PM_{10} , à la fois pour le transport à basse altitude, mais aussi pour le transport à travers les systèmes frontaux.

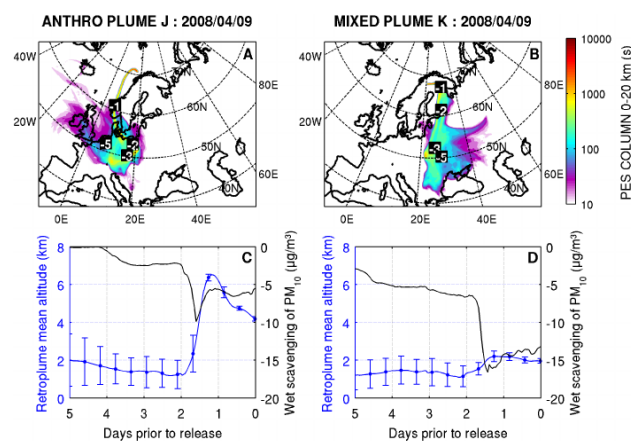


FIGURE 2.3 PES (Potential Emission Sensitivity) intégrée verticalement et obtenue à partir de FLEXPART-WRF en mode « backward » montrant des chemins de transport typiques d'un panache anthropique (A) et un panache issu d'un mélange d'émissions anthropiques et de feux (B). Les panneaux (C) et (D) montrent l'altitude moyenne de chaque panache avec sa dispersion (bleu) et l'impact du dépôt humide sur les PM_{10} (noir) au cours du transport. Source : MARELLE et al. (2015).

Les processus décrits précédemment ont favorisé la constitution de plusieurs couches d'aérosols stratifiées en Arctique (Figure 2.4). La distribution verticale des couches d'aérosols est particulièrement importante et joue un rôle non négligeable sur le bilan radiatif localement (chapitre 5). Au cours du transport vers l'Arctique, qui a duré 4 jours, les émissions de feux de biomasse jouent un rôle déterminant sur les concentrations entre 2.5 et 3 km d'altitude, tandis que les émissions

anthropiques d'origine européenne influencent de manière prépondérante les concentrations d'aérosols en basses couches (< 1.5 km), ainsi qu'à des altitudes plus élevées (> 4.5 km). En proportion de $PM_{2.5}$, les concentrations en BC et SO_4^{2-} augmentent davantage au voisinage de la surface dans les panaches d'origine anthropique. Les mécanismes de transport ainsi que le dépôt humide s'avèrent donc être des processus critiques contrôlant les niveaux d'aérosols atteignant l'Arctique au printemps.

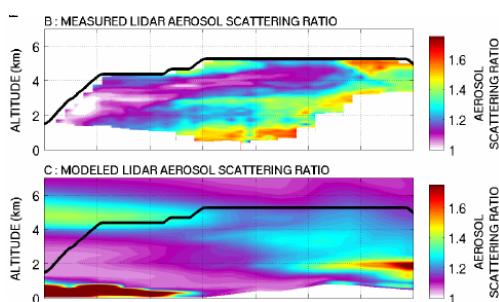


FIGURE 2.4 $PM_{2.5}$ mesurées in situ (A), pseudo-rapport de diffusion à 532 nm mesuré par le lidar au nadir (B), pseudo-rapport de diffusion à 532 nm simulé par WRF-Chem (C), coupe verticale des $PM_{2.5}$ modélisés (D) et coupe verticale de la concentration en nombre le long du vol du 9 avril 2008. Source : MARELLE et al. (2015)

2.3 Transport de panaches depuis l'Amérique du Nord en été

L'article de MARELLE et al. (2015) étant restreint à l'étude des aérosols de pollution, le transport à longue distance d'ozone depuis les moyennes latitudes n'a pas été l'objet d'un intérêt particulier. Néanmoins, la production d'ozone dans les panaches transportés en Arctique peut être significative (ALVARADO et al., 2010; ANCELLET et al., 2016). Les émissions de feux sont caractérisées par de fortes concentrations en nombre d'aérosols et de précurseurs d'ozone. Les aérosols contenant des proportions importantes de carbone suie et l'ozone issus des panaches de feux peuvent contribuer de façon significative au réchauffement en Arctique. Les émissions depuis les feux se mélangent également à la pollution issue des sources d'origine anthropique aux moyennes latitudes, qui peuvent également participer au réchauffement en Arctique. Bien que ce manuscrit soit ciblé sur l'étude des aérosols en Arctique, les concentrations d'ozone sont importantes à déterminer pour estimer l'effet radiatif de la pollution transportée vers l'Arctique, et donc de connaître les contributions des aérosols dans ce forçage (chapitre 5). Le transport à longue distance de pollution contribue aux niveaux de fond et épisodiques de concentrations d'ozone en Arctique (ANCELLET et al., 2016). Cependant, l'étendue sur laquelle les panaches demeurent actifs d'un point de vue photochimique pendant le transport, particulièrement en été, est toujours incertaine.

Dans THOMAS et al. (2013), des simulations avec WRF-Chem à haute résolution spatiale (12 km) sont utilisées pour examiner la pollution photochimique à l'ozone lors du transport de masses d'air vers l'Arctique à l'été 2008, et pour déterminer l'impact des émissions de feux boréaux ou d'origine anthropique en provenance d'Amérique du Nord sur la production nette d'ozone à des échelles spatiales plus larges. Le traitement des émissions de feux de forêt est pris en compte en utilisant un module de pyroconvection couplé à WRF-Chem, qui prévoit la hauteur d'injection du panache de feu. Les résultats du modèle sont évalués à partir des données aéroportées de POLARCAT collectées au-dessus des régions sources de feux boréaux dans le Nord du Canada (ARCTAS-B, JACOB

et al. (2010)) et plusieurs jours plus tard, en aval, au-dessus du Groenland (POLARCAT-France et POLARCAT-GRACE). La contribution des processus conduisant à la pollution en Arctique est discutée en incluant l'échange stratosphère-troposphère (foliation de tropopause), l'import de polluants depuis les sources lointaines via le transport à longue distance et la photochimie locale. Les résultats du modèle sont généralement en bon accord avec les observations en termes de localisation et d'amplitude des concentrations, sauf pour certains gaz traces au-dessus des régions de feux boréaux, indiquant dans certains cas que les émissions de feux (inventaire FINN-v1) sont trop faibles. Une étude de sensibilité du modèle montre ainsi que les niveaux de CO dans les panaches de feux jeunes et âgés sont en meilleur accord avec les mesures de POLARCAT (panaches de feux jeunes et âgés) lorsqu'on double les émissions de CO des feux.

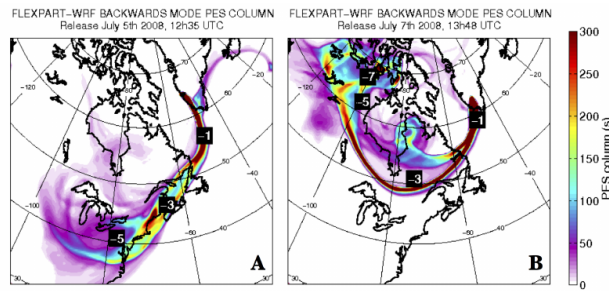


FIGURE 2.5 PES de FLEXPART-WRF pour des panaches échantillonnés par l'ATR-42, d'origine anthropique le 5 juillet (A) et de feux de forêt boréaux le 7 juillet 2008 (B). Source : THOMAS et al. (2013).

Le vieillissement des panaches, leur origine et les routes de transport empruntées ont été estimées à l'aide du modèle lagrangien FLEXPART-WRF, dont le calcul des trajectoires de masses d'air a permis d'établir clairement des connexions entre régions sources et mesures obtenues en aval au-dessus du Groenland (Figure 2.5). La pollution anthropique majoritairement du Nord-Est des États-Unis et issue des feux de biomasse originaires du Canada a été rapidement injectée en altitude par des mouvements ascendants associés à un système frontal au-dessus de l'Atlantique, puis transportée vers l'Est et le Nord jusqu'au Groenland où des panaches de pollution ont été observés, 4 jours plus tard, dans la haute et moyenne troposphère pendant POLARCAT.

L'analyse des résultats du modèle montre, en utilisant les rapports d'augmentation d'ozone et de CO $\left(\frac{\Delta O_3}{\Delta CO}\right)$, que les panaches de pollution ont formé de l'ozone pendant le transport vers l'Arctique. De jeunes panaches d'origine anthropique ont des rapports $\frac{\Delta O_3}{\Delta CO}$ de 0.63, valeur qui augmente jusqu'à 0.92 dans les panaches anthropiques âgés, indiquant une production additionnelle d'ozone au cours du vieillissement. Les jeunes panaches issus des feux de biomasse sont seulement faiblement enrichis en ozone avec $\frac{\Delta O_3}{\Delta CO} = 0.08$, mais ils forment de l'ozone en aval avec $\frac{\Delta O_3}{\Delta CO} = 0.49$ en vieillissant. Nous avons estimé que la pollution âgée d'origine anthropique ou de feux constitue une contribution significative aux niveaux d'ozone. Nous avons ainsi calculé une contribution moyenne, pour les latitudes $> 55^\circ N$, allant jusqu'à 6.5 ppbv (18%) pour la pollution anthropique et 3 ppbv (5.2%) pour la pollution de feux dans le domaine de simulation à l'été 2008 (Figure 2.6). Contrairement à des études antérieures et basées exclusivement sur des panaches de feux très jeunes, nous avons montré que les panaches de feux canadiens avaient une activité photochimique réelle, produisant de l'ozone en Arctique en vieillissant.

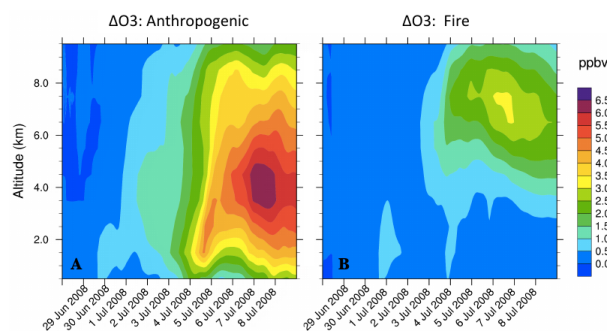


FIGURE 2.6 Accroissement moyen en ozone au-delà de 55°N dans les panaches anthropiques (A) et de feux (B). Source : THOMAS et al. (2013).

2.4 Transport de pollution au-dessus du pôle en été et processus de dépôt associés

Pendant la campagne aéroportée ACCESS réalisée au Nord de la Norvège en juillet 2012, des feux de forêt boréaux intenses ont été détectés dans les régions Ouest et Est de la Sibérie (région de Yakutsk). Ces feux étaient associés à des records de température estivale en Sibérie, conduisant à de fortes émissions de gaz traces et de particules (PONOMAREV, 2013). Ils ont engendré un transport important d'aérosols vers l'Arctique. Un épisode d'une dizaine de jours associant feux de biomasse intenses au-dessus de la Sibérie et systèmes dépressionnaires au-dessus de l'océan Arctique a été la cause d'un transport efficace de panaches contenant du BC vers l'Arctique, principalement dans la haute troposphère (6 – 8 km).

Une complémentarité entre observations in situ (depuis le Falcon-20 du DLR), analyses satellitaires, trajectoires lagrangiennes et simulations WRF-Chem a été utilisée pour comprendre les mécanismes de transport vertical et horizontal des masses d'air contenant du carbone suie (BC) (RAUT et al., 2017). Nous avons ciblé prioritairement les facteurs qui affectent ce transport, notamment la situation météorologique, les processus de dépôts sec et humide et nous avons évalué la contribution relative des sources anthropiques, des torchères et des feux aux concentrations de BC. Entre les côtes norvégiennes et le Svalbard, l'avion de recherche a échantillonné des panaches représentatifs du transport passant au-dessus du pôle Nord avec des concentrations en CO enrichies jusqu'à 200 ppbv et des rapports de mélange de BC allant jusqu'à 25 ng/kg (Figure 2.7).

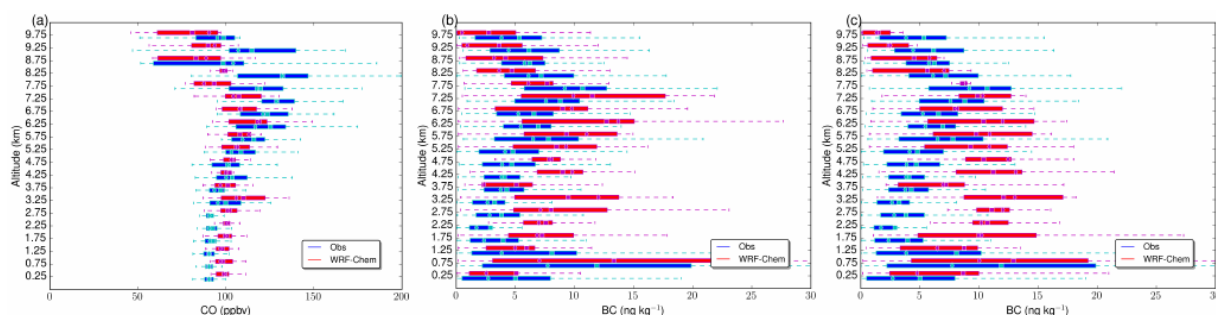


FIGURE 2.7 Profils verticaux des rapports de mélange observés (bleu) et modélisés (rouge) en CO (a), BC à 40 km (b) et à 100 km (c) interpolés le long des traces des 14 vols du Falcon. Source : RAUT et al. (2017).

Pour cette étude, le dépôt sec de l'aérosol est modélisé en utilisant une paramétrisation classique de résistances en série (WESELY et HICKS, 2000). Le dépôt humide des aérosols par les nuages

TABLE 2.1 Processus inclus dans le module MOSAIC.

Processus	Sous-module MOSAIC	Référence
Photochimie en phase gazeuse	CBM-Z	ZAVERI et L. K. PETERS (1999)
Formation de nouvelles particules (nucléation)	$\text{H}_2\text{SO}_4 + \text{H}_2\text{O}$	WEXLER et al. (1994)
Coagulation	Noyau brownien	JACOBSON et al. (1994)
Croissance sectionnelle	Méthode à deux moments	SIMMEL et WURZLER (2006)
Thermodynamique (coefficients d'activité)	MTEM	ZAVERI et al. (2005a)
Thermodynamique (état d'équilibre de phase)	MESA	ZAVERI et al. (2005b)
Partitionnement dynamique gaz-particule	ASTEM (Dynamic)	ZAVERI et al. (2008)
Paramètres d'activité des CCN (hygroscopicité)	κ -Köhler	M. PETERS et KREIDENWEIS (2007)
Propriétés optiques (module noyau-enveloppe)	ACKMIE (Shell-Core)	T. P. ACKERMAN et TOON (1981)

stratiformes résolus par le modèle et la précipitation qui leur est associée inclut le lessivage dans et en dessous des nuages par la pluie, la neige, la grêle, via des mécanismes de diffusion brownienne, interception et impaction (EASTER et al., 2004; CHAPMAN et al., 2009). Les interactions aérosols-nuages ont été intégrées au modèle pour déterminer l'activation et la resuspension entre les aérosols secs et les gouttelettes nuageuses (GUSTAFSON et al., 2007). Enfin, la version du modèle utilisée dans cette étude bénéficie, pour la première fois, de l'inclusion de la couverture fractionnée des nuages actifs et passifs, du transport vertical, de l'activation et de la resuspension, du lessivage humide et de la chimie aqueuse pour les particules au sein des gouttelettes dans les nuages paramétrisés de convection profonde et peu profonde (BERG et al., 2015). Ces processus ont, depuis, été intégrés dans la version officielle distribuée, à partir de WRF-Chem 3.8.

Les particules de suie enrobées avec des composés secondaires non réfractaires et solubles peuvent devenir des CCN actifs dans les nuages d'eau liquide. Dans le module d'aérosols MOSAIC (MOdel for Simulating Aerosol Interactions and Chemistry, (ZAVERI et al., 2008)) utilisé dans WRF-Chem (Table 2.1), les composants de l'aérosol (en l'occurrence le sulfate, le nitrate, l'ammonium, les OA, le BC, les poussières minérales, les sels de mer) sont supposés subir, instantanément, un mélange interne dans chaque classe de taille. Cette hypothèse est importante pour cette étude car M. D. PETERS et al. (2009) ont montré que les particules de BC en mélange interne pouvaient être davantage hygroscopiques et plus facilement déposées par lessivage humide par rapport aux particules de BC en mélange externe (Figure 2.8). Cela pourrait conduire à une surestimation du dépôt humide du BC simulé par WRF-Chem. Mais, en réalité, nos résultats ne devraient être que faiblement impactés, car les particules de BC échantillonnées par le Falcon ont principalement été transportées dans des panaches de feux de biomasse depuis la Sibérie. Or KONDO et al. (2011) et SAHU et al. (2012) ont observé que le BC dans les panaches de feux est plus souvent en mélange interne qu'il ne l'est dans les émissions de combustibles fossiles et présente fréquemment des enrobages très épais (DAHLKÖTTER et al., 2014). Le mélange interne semble se produire dans les toutes premières heures après émission (ABEL et al., 2003; AKAGI et al., 2012).

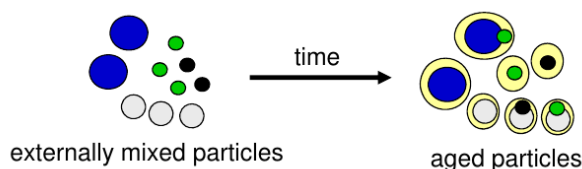


FIGURE 2.8 États de mélange externe et interne.

Au cours de leur transport jusqu'en Arctique, une large fraction des particules de suie a été lessivée par deux processus de dépôt humide liés d'une part à la précipitation à grande échelle, et d'autre part aux ascendances convectives, contribuant tous deux de manière à peu près équivalente au dépôt total accumulé de BC. Le rôle faible du dépôt sec reste cantonné à la basse troposphère. Nos résultats ont souligné qu'affiner la résolution horizontale du modèle (40 km au lieu de 100 km) revenait à améliorer la performance du modèle en réduisant de manière significative la surestimation des niveaux de BC observés avec une résolution grossière dans la moyenne troposphère (Figure 2.7). Cela souligne l'importance de la restitution des structures fines des panaches transportés en altitude au-dessus du pôle, des structures des nuages et des précipitations, et des processus de lessivage à l'échelle sous-maille.

En se basant sur les simulations à 40 km, une bonne corrélation spatiale a été mise en évidence entre la distribution horizontale d'épaisseur optique (AOD) mesurée par MODIS (KING et al., 1992), embarqué sur les plateformes à orbite polaire Terra et Aqua, les régions à forte divergence des flux horizontaux de BC dans la troposphère libre et la distribution spatiale des flux verticaux moyens de masse de BC, soulignant des conditions idéales pour le transport de BC vers le pôle (Figure 2.9). Cela met en évidence deux régions majeures de feux de biomasse en Sibérie, le Sud de la région de Krasnoyarsk et la Yakutie, et une source de pollution anthropique au centre et au Nord-Est de la Chine. Les aérosols et le CO émis depuis les deux régions de feux de forêt sont exportés vers l'Arctique à travers le Nord de la Yakutie dans une région présentant une importante composante horizontale du flux de chaleur turbulent vers le pôle (Figure 2.9). Leur transport vers le Pôle Nord est causé par des systèmes dépressionnaires pilotant la progression et la direction des panaches (Figure 2.10). Dans les couches atmosphériques les plus basses en Arctique, de faibles augmentations de CO et BC sont associées au transport inefficace d'émissions anthropiques européennes et, dans une moindre mesure, aux activités des torchères au Nord de la Russie. Ces émissions sont exportées au-dessus de la mer de Barents et transportées à basse altitude en Arctique.

Pendant le transport via le pôle des panaches sibériens et asiatiques vers l'Arctique, une grande partie des particules de BC mélangées avec suffisamment de composés solubles deviennent des CCN actifs et sont lessivés par les gouttelettes nuageuses et les gouttes de pluie, via un dépôt humide associé à la section chaude des cyclones (WCB) des latitudes moyennes. L'efficacité du transport de BC dans les panaches de feux de biomasse était plus grande (60%), car il était associé à un niveau faible de précipitations accumulées (1 mm) le long des trajectoires de transport. À l'inverse, l'efficacité de transport était inférieure ($< 30\%$) et les niveaux de précipitations accumulées associés plus importants (5 – 10 mm) dans les panaches influencés par les sources anthropiques d'origine urbaine et les activités de torchères dans le Nord de la Russie, conduisant à un transport à plus basse altitude. L'efficacité du transport de BC liée à la précipitation à grande échelle est responsable d'un gradient méridien marqué dans la distribution des concentrations de BC (Figure 2.11). Le dépôt humide au sein des cumulus, quant à lui, agit sur le gradient vertical modélisé de l'efficacité du transport de BC, en particulier aux latitudes moyennes, reflétant la distribution de précipitation convective, mais est dominé en Arctique par le dépôt humide à grande échelle associé à la formation de stratocumulus dans la CLA, responsables de nombreux événements de bruine (Figure 2.11).

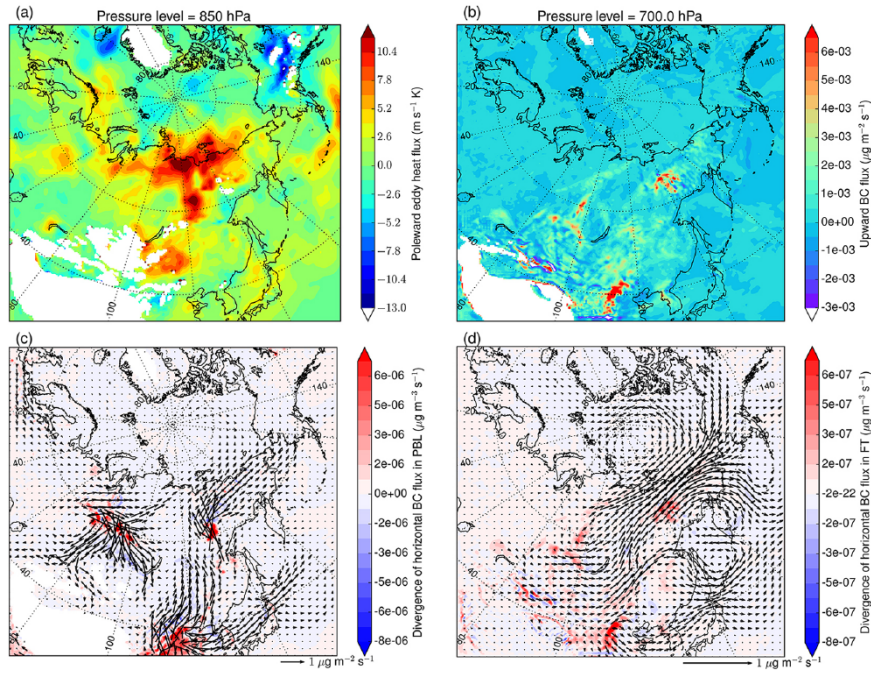


FIGURE 2.9 Moyenne temporelle du flux de chaleur horizontal turbulent dirigé vers le pôle $\overline{v'\theta'}$ à 850 hPa (a), du flux vertical de masse de BC $\overline{[BC]w}$ à 700 hPa (b), de la divergence du flux de masse horizontal de BC intégrée sur la CLA (c) et sur la troposphère libre (d). Source : RAUT et al. (2017).

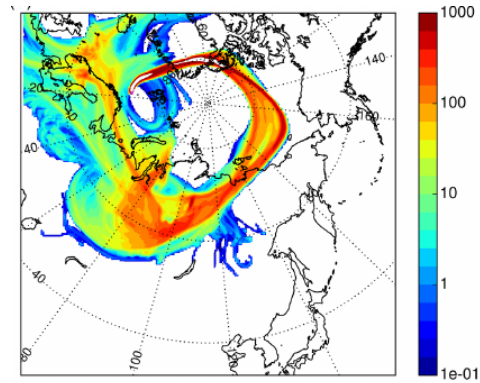


FIGURE 2.10 PES intégrés verticalement, calculés à l'aide de FLEXPART-WRF à partir du panache de feux de biomasse observé par le Falcon le 17 juillet à 6.5 km. Source : RAUT et al. (2017).

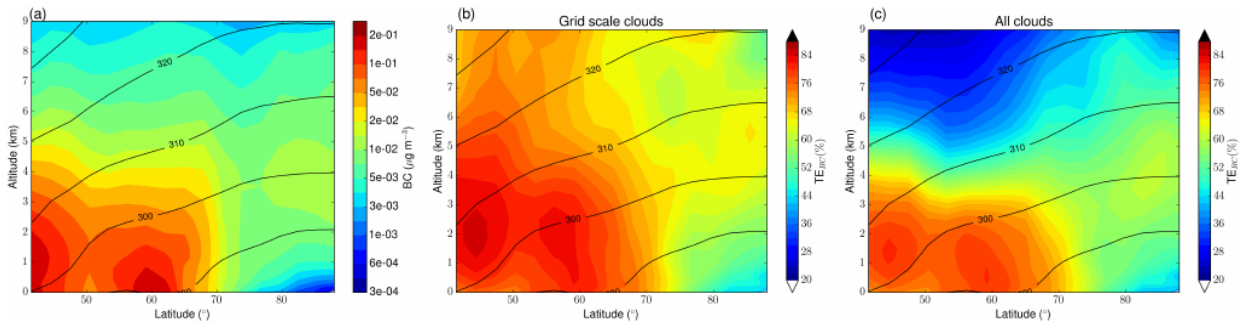


FIGURE 2.11 Coupes verticales des moyennes zonales et temporelles des concentrations massiques de BC (a) et des efficacités de transport de BC liées aux nuages résolus par le modèle (b) et à tous les nuages (c). Les lignes noires désignent les lignes de niveaux des températures des isentropes sèches. Source : RAUT et al. (2017).

Une bonne compréhension des contributions respectives des différents processus de dépôt humide est donc fondamentale car ceux-ci conditionnent la distribution verticale du BC en Arctique

et modulent précisément le transport à longue distance en altitude du BC d'Asie et de Sibérie vers l'Arctique, avec une composante zonale marquée.

2.5 Transport des panaches depuis l'Amérique du Nord au printemps

Dans le cadre de la campagne de terrain PARCS, effectuée entre le 13 et le 26 mai 2016 dans la région d'Hammerfest au Nord de la Norvège, nous avons cherché à étudier l'origine des aérosols au printemps en région arctique. Nous avons pour cela recueilli un jeu de données original issu de mesures de télédétection réalisées à l'aide de deux lidars Raman embarqués, pour l'un dans un ULM pour des mesures à visée verticale au nadir ou horizontale et, pour l'autre, dans un camion climatisé basé au sol pour des mesures verticales au zénith (CHAZETTE et al., 2018). Les lidars ont permis de décrire à la fois la structure verticale et les propriétés optiques des panaches d'aérosols détectés, de même que l'histoire de leur transport en utilisant une synergie entre les observations des satellites CALIPSO et MODIS et la modélisation à méso-échelle.

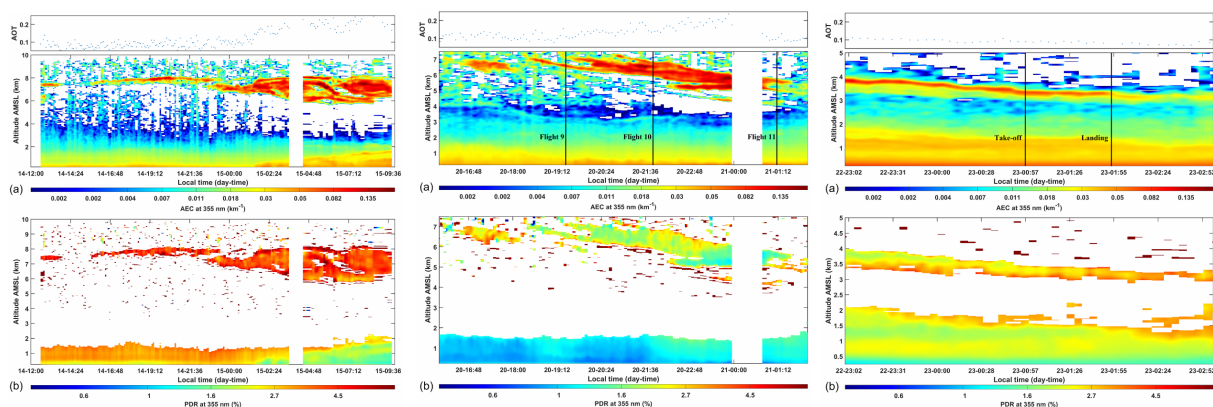


FIGURE 2.12 Évolutions temporelles du coefficient d'extinction (AEC) et de l'épaisseur optique (AOT) des aérosols (a) et du rapport de dépolarisation particulaire (PDR) (b) à la longueur d'onde de 355 nm entre les 14 et 15 mai (gauche), 20 et 21 mai (milieu) et 22 et 23 mai (droite) 2016. Source : CHAZETTE et al. (2018)

La complémentarité entre mesures lidar au sol et aéroportées fait apparaître un découplage net entre les couches d'aérosols inférieures (< 3 km) et supérieures (> 3 km). Ce découplage se manifeste en premier lieu par des propriétés optiques bien distinctes dans les deux couches (Figure 2.12). Dans les couches inférieures, d'aspect homogène, le rapport lidar, représentant le ratio entre les coefficients d'extinction et de rétrodiffusion de l'aérosol, est systématiquement plus faible, avec des valeurs entre 25 et 40 sr avant le 21 mai. Ces valeurs associées à des rapports de dépolarisation faibles ($< 3\%$), atteignant même parfois seulement 1%, traduisent une forte influence des sources océaniques et de l'aérosol marin. Après le 22 mai, les valeurs de rapport lidar sont plus élevées (71 ± 5 sr), plus caractéristiques d'un mélange d'aérosols marins et de particules de pollution en basse couche. La quantité d'aérosols mesurée dans les trois premiers kilomètres de la troposphère est restée faible tout au long de la campagne, avec une épaisseur optique de 0.1 à 355 nm (~ 0.05 à 550 nm). Les principaux responsables de l'évolution du contenu en aérosols en basse altitude sont une des torchères sur le complexe de traitement de gaz de Melkøya (section 4.2.1), la source océanique et le transport des aérosols depuis les sites industriels en Russie.

Les couches supérieures en revanche font apparaître des structures remarquables, plus hétérogènes, dans l'évolution temporelle du coefficient d'extinction de l'aérosol (Figure 2.12). Les

couches observées ne présentent pas de continuité et sont davantage détectées de manière intermittente. Les observations lidar nous ont ainsi permis d'identifier trois cas de transport à grande distance sur deux semaines à des altitudes comprises entre 3 et 8 km (Figure 2.12). Les couches sont caractérisées par des rapports lidar beaucoup plus élevés (51 – 96 sr) et des rapports de dé-polarisation particuliers pouvant atteindre 5 – 6%. Ces dernières sont trop faibles pour être caractéristiques de poussières minérales dépolarisant le signal lidar. Ces couches aux rapports lidar plus élevés présentent des valeurs typiques pour des aérosols de pollution ou de feux et contribuent à augmenter significativement l'épaisseur optique de 0.1 – 0.12, sauf en fin de période où les augmentations d'épaisseur optique sont plus modestes (0.03).

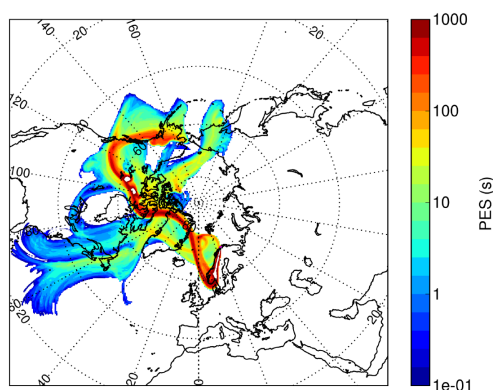


FIGURE 2.13 PES intégrés sur 9 jours pour le panache observé dans la troposphère libre au-dessus d'Hammerfest les 14-15 mai 2016. Source : CHAZETTE et al. (2018).

La campagne PARCS s'est déroulée dans des conditions synoptiques perturbées par le fort El Niño de 2015-2016 (S. HU et FEDOROV, 2017), qui a engendré des températures dans la CLA arctique de 3 à 4°C au-dessus des normales climatiques calculées sur 10 ans (TOTEMS et al., 2019). Ces conditions atmosphériques exceptionnelles ont favorisé le transport dans la haute troposphère de masses d'air depuis l'Amérique du Nord. Or, le printemps 2016 a été marqué par des feux de forêt extrêmes sur le territoire de l'Alberta au Canada, au voisinage de Fort Murray (56.72°N, 111.38°O) (KOCHTUBAJDA et al., 2017 ; LANDIS et al., 2018). En utilisant FLEXPART-WRF, nous avons montré que les panaches observés en altitude et contenant des aérosols étaient bien le résultat de ces feux de forêt intenses ayant pris naissance dans la région de Fort McMurray au Canada (Figure 2.13). Le couplage entre la pyroconvection (FROMM et al., 2005 ; PETERSON et al., 2015) et le transport atmosphérique à grande échelle a contribué à injecter de grandes quantités d'aérosols, dont le temps de vie dépasse largement une semaine en absence de précipitation au cours de leur transport à haute troposphère.

Par exemple, le premier panache observé à Hammerfest les 14 et 15 mai a été détecté par MODIS et CALIPSO au-dessus de l'Alberta le 8 mai avec une épaisseur optique supérieure à 0.4 à 550 nm (Figure 2.14). Le panache se déplace ensuite au Nord Ouest de la baie d'Hudson et atteint la mer de Baffin le 12 mai. Il traverse ensuite le Nord du Groenland puis la mer du Groenland le 13 mai. Un flux de Nord prononcé conduit finalement le panache à Hammerfest, contournant le système dépressionnaire situé au Nord de la Norvège et responsable de la courbure de la trajectoire du panache. La contribution des ces panaches peut aller jusqu'à doubler les valeurs d'épaisseur optique au-dessus de l'Arctique. L'épaisseur optique est ainsi passée d'une valeur de fond d'au plus ~ 0.08 (~ 0.05), à 0.2 (0.12) à la longueur d'onde de 355 nm (respectivement 550 nm) (Fi-

gure 2.14). Cela peut signifier une forte influence du transport à longue distance d'aérosols de feux de biomasse sur le bilan radiatif en région arctique.

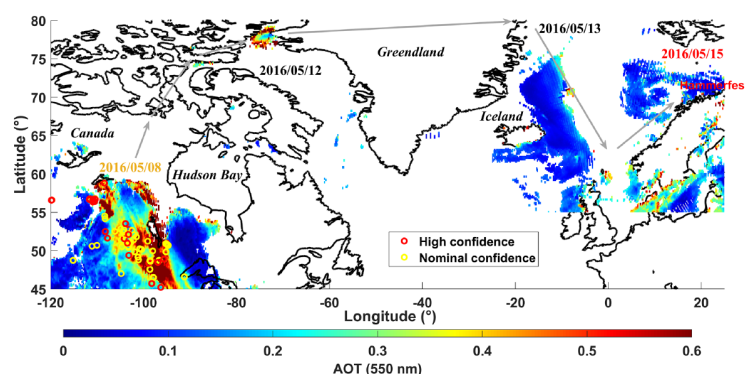


FIGURE 2.14 Image composite représentant les épaisseurs optiques obtenues à partir de MODIS à 550 nm à différentes dates correspondant au chemin suivi (en gris) par le panache de feux de biomasse entre le 8 et le 15 mai 2016. Les anomalies thermiques du produit feux de MODIS sont aussi indiquées pour identifier les sources de feux le 8 mai. Source : CHAZETTE et al. (2018).

2.6 Conclusions du chapitre

Le transport d'émissions depuis les moyennes latitudes vers l'Arctique est principalement facilité par le transport efficace vers le pôle à travers des WCBs associés aux systèmes frontaux des cyclones aux latitudes moyennes. La conséquence est que, bien que l'Arctique soit une zone éloignée des régions sources, les augmentations en Arctique de la pollution des gaz traces et des aérosols sont loin d'être homogènes. Elles sont davantage caractérisées par l'apport épisodique de masses d'air polluées, exportées depuis la CLA aux moyennes latitudes par une advection à grande échelle dans les systèmes frontaux. L'air pollué soulevé depuis les latitudes plus chaudes au Sud (Asie et Amérique du Nord) tend à entrer en Arctique à des altitudes plus élevées, tandis que l'air à proximité de la surface est influencé principalement par le flux de basses couches provenant des régions sources, plus froides, au Nord, particulièrement d'Europe. La stratification de l'advection à grande échelle et du mélange vertical lent tendent à une structure des masses d'air filamentaire, multi-étagée en couches fines tout au long de la troposphère arctique, où les masses d'air d'origines diverses produisent des couches distinctes et ne se mélangent qu'en proximité immédiate, en conservant généralement leur propre signature chimique (ENGVALL et al., 2008; SCHMALE et al., 2011). Les masses d'air peuvent éventuellement s'homogénéiser par mélange turbulent et refroidissement radiatif, mais habituellement sur des échelles de temps plus longues que l'advection rapide le long des surfaces isentropes, caractéristique du transport intercontinental dans ces systèmes. Pour des modèles globaux ou régionaux eulériens, représenter la fine échelle des panaches, le lent mélange et la transformation chimique qui s'ensuivent est un défi, notamment à des résolutions horizontales supérieures à 100 km. Or, le devenir environnemental des polluants atmosphériques en Arctique est largement déterminé par le transfert depuis l'atmosphère vers la surface et est donc influencé par la structure verticale de la troposphère arctique. Comprendre le transport vertical en Arctique est une des questions clés pour évaluer les impacts des polluants extérieurs à l'Arctique sur les systèmes biogéochimiques en Arctique. Les taux de dépôt sec à la surface de l'Arctique et le lessivage humide au sein et en dessous des nuages liquides, glacés ou

en phase mixte demeurent faiblement contraints. Un manque de connaissance des taux de dépôt des polluants peut s'avérer être une piste sérieuse pour expliquer la faible performance de nombreux modèles à simuler le cycle saisonnier et l'ordre de grandeur des aérosols en comparaison des mesures en Arctique (section 2.4). En particulier, le désaccord avec les observations s'est révélé sensible à la représentation des processus de dépôt humide et de microphysique des aérosols (par exemple le vieillissement du carbone suie) dans les modèles.

Évaluations multi-modèles des distributions des polluants à courte durée de vie en Arctique

Cette section s'appuie sur les travaux publiés dans L. EMMONS et al. (2015), MONKS et al. (2015), STOHL et al. (2015), ECKHARDT et al. (2015) et QUENNEHEN et al. (2016).

Notre compréhension des contributions des sources de polluants à courte durée de vie au réchauffement actuel en Arctique dépend de la capacité des modèles à simuler le transport, le vieillissement et les modifications chimiques de ces polluants au cours de leur transport vers l'Arctique depuis les sources situées à des latitudes inférieures. La performance des modèles conditionne notre confiance sur les prédictions de la réponse climatique à des changements futurs des émissions anthropiques et des feux aux latitudes moyennes. Des comparaisons des résultats de modèles à des observations en surface sur le long terme ont montré que les modèles de chimie-transport globaux étaient notablement limités pour simuler précisément la composition de la troposphère arctique (SHINDELL et al., 2008). Les modèles globaux présentent en particulier de fortes disparités dans la modélisation des rapports de mélange des aérosols (dont le BC) en Arctique et de leur variabilité saisonnière (SHINDELL et al., 2008; KOCH et al., 2009; LEE et al., 2013; SCHWARZ et al., 2013).

De plus, les effets radiatifs des aérosols ne sont pas tant déterminés par les concentrations en surface que par les contenus dans la colonne et par la distribution verticale de l'aérosol (SAMSET et al., 2014; SAMSET et MYHRE, 2011). Cependant, dans le passé, les résultats des modèles en Arctique ont été majoritairement évalués seulement par rapport aux mesures en surface, et ceci en raison de leur disponibilité sur de longues périodes de temps. Mais, les concentrations en surface ne sont pas représentatives des concentrations au-dessus, qui sont contrôlées, au moins en partie, par différentes régions sources et différents processus. Il est par conséquent important d'évaluer les modèles, non seulement par rapport aux mesures en surface, mais aussi en utilisant l'information sur les profils verticaux. Cela a motivé notre participation aux projets d'intercomparaison de modèles : POLMIP (POLARCAT Model Intercomparison Project), ECLIPSE et AMAP (Arctic Monitoring and Assessment Programme, (AMAP, 2015)).

3.1 Intercomparaison POLMIP

Le projet d'intercomparaison de modèles POLMIP a été organisé dans l'objectif d'exploiter le vaste ensemble d'observations sur la composition atmosphérique réalisées dans le cadre de POLARCAT, pour évaluer de manière exhaustive plusieurs modèles de chimie transport et pour mieux comprendre les raisons des défaillances des modèles en Arctique. Neuf modèles de chimie transport globaux et deux modèles régionaux, dont WRF-Chem que nous avons fait tourner à 100 et 50 km de résolution, ont participé à cette intercomparaison et ont réalisé des simulations pour l'année 2008 en utilisant un inventaire d'émissions commun, de manière à pouvoir évaluer les différences dans les schémas de chimie et de transport de ces modèles. Bien que les aérosols soient une composante importante de la composition atmosphérique en Arctique, POLMIP s'intéresse avant tout à la chimie en phase gazeuse, principalement le CO, les NO_y, l'O₃ et leurs précurseurs. L'article de L. EMMONS et al. (2015) a fourni un aperçu des modèles POLMIP et de leur évaluation par rapport aux observations, ainsi qu'une évaluation des inventaires utilisés par les modèles. L'évaluation utilise de nombreuses observations complémentaires en surface ou embarquées sur ballon, avion ou satellite (Figure 3.1).

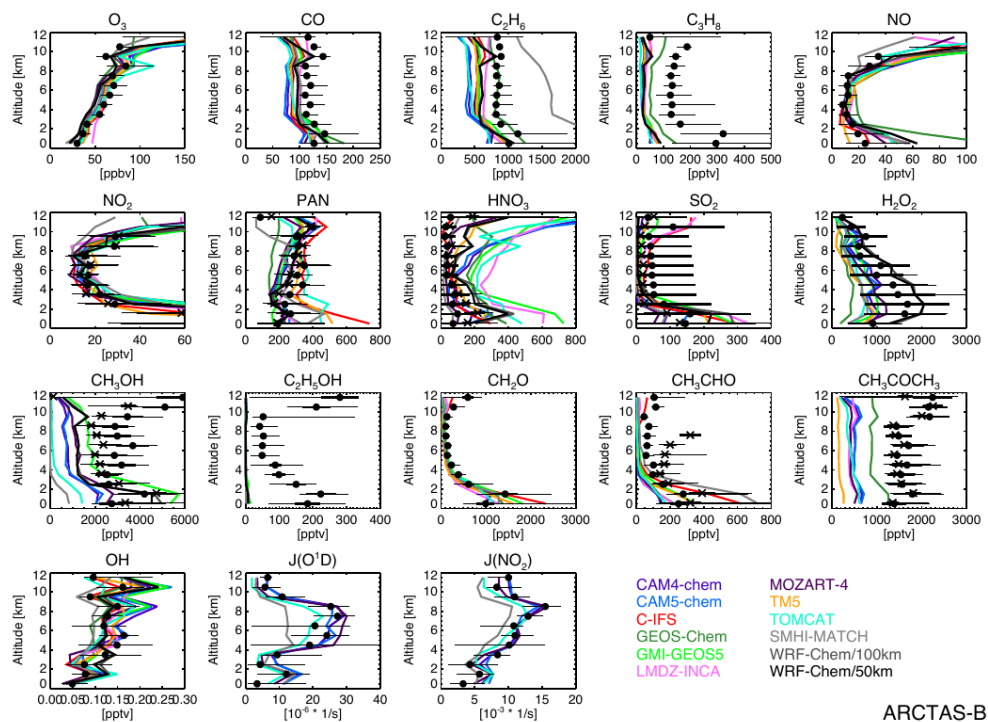


FIGURE 3.1 Comparaison des résultats de modèles interpolés le long des vols du DC-8 pendant ARCTAS-B. Chaque profil est une médiane sur des zones de 1 km d'épaisseur. Les médianes mesurées sont reportées en cercles pleins ou en croix. Les barres d'erreur larges représentent l'incertitude des mesures, les barres fines représentent l'étendue interquartile de toutes les observations. Source : L. EMMONS et al. (2015).

Bien que les modèles utilisent les mêmes émissions, de grandes différences ont été observées. Les champs de nuages et les taux de photolyse varient énormément entre les modèles, suggérant qu'ils sont sources de différences dans les espèces chimiques simulées. Les plus grands écarts parmi les modèles, et entre modèles et observations, résident dans le partitionnement des NO_y (PAN vs HNO₃) et dans les COVs oxygénés, comme l'acétaldéhyde et l'acétone (Figure 3.2). Des comparaisons aux mesures en surface d'éthane et de propane indiquent que les émissions de ces

espèces sont sous-estimées de manière importante. Des observations satellitaires du NO_2 à partir d'OMI (Ozone Monitoring Instrument) ont été utilisées pour évaluer les modèles au-dessus des régions sources, indiquant que les émissions anthropiques sont sous-estimées dans l'Est de l'Asie, mais que les émissions de feux sont généralement surestimées. Les facteurs d'émissions des feux canadiens sont évalués en utilisant des corrélations entre COVs et CO dans les sorties de modèles, et sont ensuite comparés aux facteurs d'accroissement obtenus via les observations aéroportées. Cela montre un accord raisonnable pour les facteurs d'émission de méthanol et d'acétaldéhyde, mais en sous-estimant ceux d'éthanol, de propane, d'acétone et en surestimant ceux d'éthane.

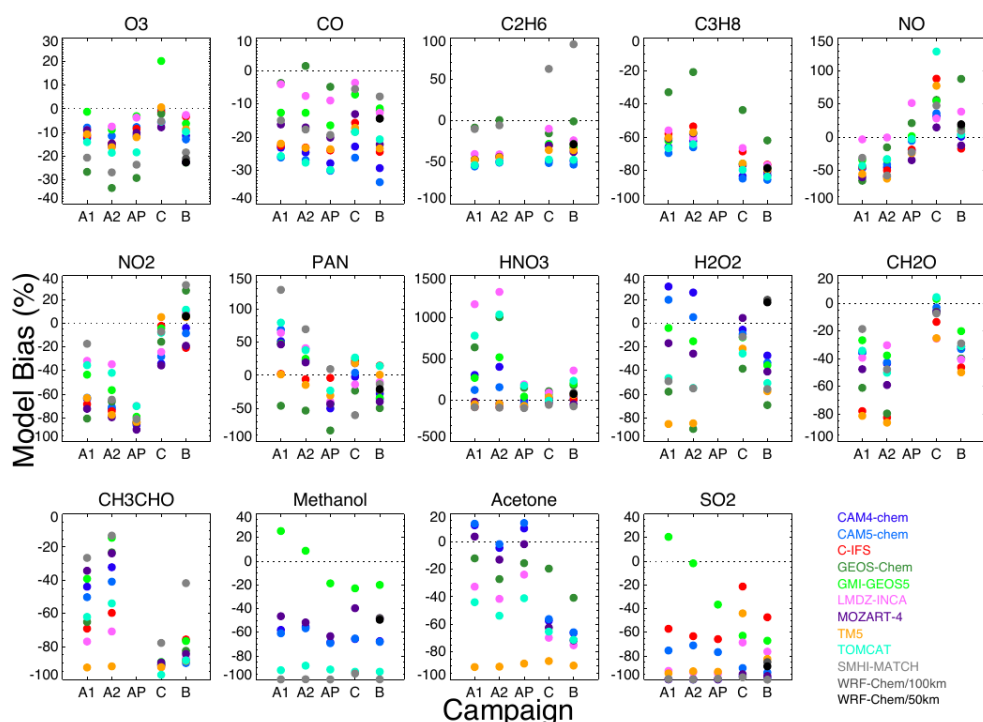


FIGURE 3.2 Biais moyens (%) entre modèles et observations aéroportées moyennées entre 3 et 7 km et par campagne. Source : L. EMMONS et al. (2015).

Dans l'article de MONKS et al. (2015), nous évaluons de manière complète, grâce à des observations en surface, aéroportées et satellitaires, les résultats de simulations multi-modèles de CO et d' O_3 en Arctique et au-dessus des régions d'émissions aux latitudes plus faibles. L'évaluation des 11 modèles avec chimie montre qu'ils sous-estiment généralement le CO dans toute la troposphère arctique, les plus forts biais étant notés en hiver et au printemps (Figure 3.3). Des biais négatifs de CO sont également trouvés à travers l'Hémisphère Nord, avec des erreurs normalisées moyennes de 9 – 12%, suggérant que les modèles se comportent de manière similaire en Asie, en Amérique du Nord et en Europe. Une moyenne annuelle multi-modèles de l'OH troposphérique de $10.8 \pm 0.6 \times 10^5$ molécules/ cm^3 est obtenue, légèrement supérieure aux estimations précédentes d'OH contraintes par le méthylchloroforme, suggérant que les biais négatifs en CO dans les modèles pourraient être réduits en contraignant davantage le OH. Les modèles ayant les plus faibles valeurs d'OH en Arctique ne montrent pas systématiquement une amélioration substantielle dans les biais négatifs de CO (Figure 3.3), suggérant que le OH en Arctique n'est pas le facteur dominant contrôlant le contenu de CO en Arctique dans les modèles. En plus de ces biais généraux, les modèles ne représentent pas l'amplitude des augmentations de CO observées dans la troposphère

libre en Arctique pendant l'été, suggérant des erreurs dans la simulation des panaches qui sont transportés depuis les sources anthropiques ou de feux de biomasse aux latitudes inférieures. La concentration d' O_3 en Arctique est également généralement sous-estimée, en particulier à la surface et dans la haute troposphère. Les comparaisons d' O_3 d'été au-dessus des moyennes latitudes montrent que plusieurs modèles surestiment les concentrations troposphériques.

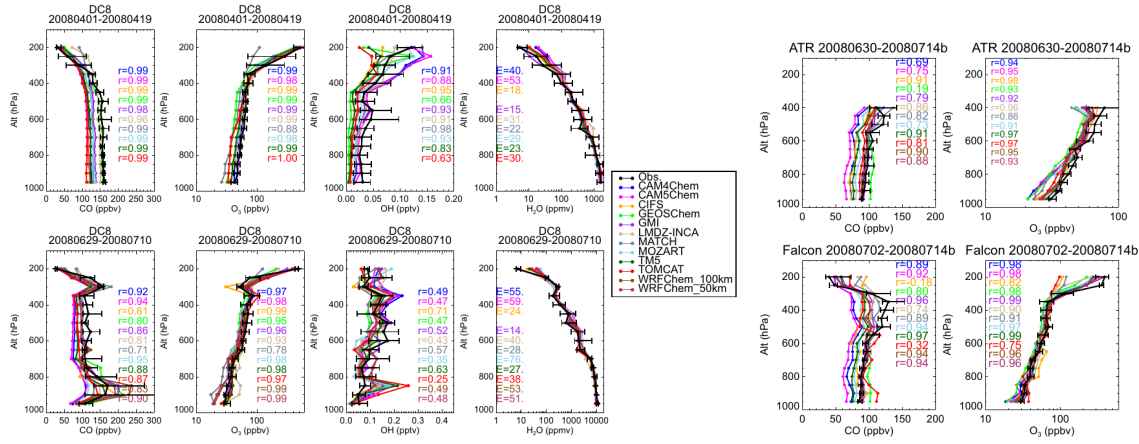


FIGURE 3.3 Profils verticaux médians du DC-8 au printemps pendant ARCTAS-A (haut) et en été pendant ARCTAS-B (bas), de l'ATR-42 pendant POLARCAT-France et du Falcon pendant POLARCAT-Grace en 2008 pour le CO, l' O_3 , OH et H_2O . Les barres d'erreur représentent l'étendue interquartile, les coefficients de corrélation de Pearson (pour CO, O_3 et OH) et l'erreur moyenne normalisée (%) (pour H_2O) sont indiqués. Source : MONKS et al. (2015).

Les concentrations de CO, O_3 et OH simulées démontrent toutes un degré important de variabilité inter-modèles (Figure 3.3). Des traceurs idéalisés comme le CO sont utilisés pour comparer de manière quantitative l'impact des différences inter-modèles de transport et d'OH sur le CO dans la troposphère arctique. Les traceurs montrent que les différences entre modèles sur le transport depuis l'Europe en hiver et depuis l'Asie tout au long de l'année constituent d'importantes sources de variabilité entre les modèles à Barrow. Contrairement au transport, la variabilité inter-modèles en OH affecte de manière similaire tous les traceurs régionaux à Barrow. Des comparaisons à des traceurs idéalisés de la perte d'OH et à temps de vie fixe comme le CO dans la troposphère arctique montrent que les différences d'OH sont une plus grande source de variabilité entre les modèles que les différences dues au transport. Les concentrations en OH modélisées sont corrélées aux concentrations en H_2O , suggérant que les concentrations en vapeur d'eau sont liées à des différences dans les concentrations simulées de CO et OH aux hautes latitudes dans ces simulations (Figure 3.3). Malgré les différences inter-modèles le transport et OH, les contributions relatives depuis les régions sources (Amérique du Nord, Europe et Asie) et des types de sources (anthropiques et feux de biomasse) sont comparables entre les modèles. Les émissions de feux depuis les régions boréales en 2008 contribuent à 33, 43 et 19% aux niveaux totaux de traceurs de type CO en Arctique au printemps, été et automne, respectivement, soulignant l'importance des émissions des feux boréaux dans le contrôle des niveaux de polluants en Arctique.

3.2 Intercomparaisons ECLIPSE et AMAP

Les concentrations d'aérosols en Arctique, en particulier de sulfate et de BC, sont caractérisées par de fortes valeurs à la fin de l'hiver et du printemps (la brume arctique), et de faibles valeurs en été et au début de l'automne (chapitre 1). Les modèles sont depuis longtemps tenus en échec pour représenter cette variabilité saisonnière (KOCH et al., 2009) et tout particulièrement les fortes concentrations associées à la brume arctique, parfois avec une sous-estimation d'un ordre de grandeur (SHINDELL et al., 2008). Les principales sources de BC sont les feux de biomasse et la combustion incomplète de combustibles fossiles ou de biocarburants (BOND et al., 2004). Les aérosols de sulfate sont formés par les sels de mer (« sea spray ») ou sont originaires de sources naturelles comme l'oxydation du DMS ou les volcans. Ils sont également produits par l'oxydation du SO₂ émis lorsque les combustibles fossiles contenant du soufre sont brûlés ou au sein des fonderies. Les études basées sur les concentrations observées en surface suggèrent, de manière récurrente, que les principales régions sources de BC et de sulfate en Arctique sont localisées aux hautes latitudes en Eurasie (ELEFThERIADIS et al., 2009; HIRDMAN et al., 2010; MARELLE et al., 2015). STOHL et al. (2013) ont suggéré que les torchères de gaz aux hautes latitudes en Russie sont une source importante de BC, absente de la plupart des inventaires d'émissions. Dans leurs simulations lagrangiennes, STOHL et al. (2013) ont montré que les émissions de BC en provenance des torchères de gaz représentaient 42% de la moyenne annuelle des concentrations de BC en surface en Arctique. Ils ont néanmoins noté la très grande incertitude associée à ces émissions.

L'objectif original du projet européen ECLIPSE était de concevoir un scénario réaliste et efficace de réduction des polluants à courte de vie (méthane, aérosols, ozone et leurs précurseurs) et de quantifier leurs impacts sur le climat et la qualité de l'air (STOHL et al., 2015). Dans le cadre de ce projet, un nouvel inventaire d'émissions, dit ECLIPSE, basé sur la législation actuelle a été développé. Il inclut notamment des sources jusqu'ici ignorées comme les torchères de gaz associées à la production de pétrole et les lampes à pétrole (KLIMONT et al., 2017). Ces émissions ont été utilisées pour des simulations de référence au temps présent (années 2008 et 2009) avec des modèles avancés de Système Terre (ESMs), des modèles de chimie-transport (CTMs) et un modèle de dispersion lagrangienne. Ces modèles ont été améliorés en tenant compte des défauts soulignés dans des études récentes, notamment pour la formation de SOA (TSIGARIDIS et al., 2014) et les paramétrisations du dépôt (SAMSET et al., 2014; HODNEBROG et al., 2014). Les simulations des modèles ont été confrontées à une grande variété d'observations en surface, aéroportées et satellitaires de polluants gazeux (CO, NO₂, O₃, SO₂) et d'aérosols en Arctique (ECKHARDT et al., 2015) et au-dessus de régions sources comme l'Europe ou l'Est de l'Asie (QUENNEHEN et al., 2016).

3.2.1 Au-dessus de l'Arctique

Les contenus en aérosols au-dessus de l'Arctique sont généralement beaucoup plus faibles que dans les régions polluées et l'Arctique ne couvre qu'une petite fraction de la Terre. Par conséquent, les impacts d'erreurs relatives, mêmes importantes, dans les concentrations modélisées en Arctique sur le forçage radiatif et la réponse climatique globale sont relativement faibles. Néanmoins, l'identification de biais dans les modèles dans cette région est importante car cela peut conduire à une meilleure compréhension des processus, et en particulier des mécanismes de dépôt des aérosols.

Une évaluation des modèles d'ECLIPSE au-dessus de l'Arctique a été coordonnée avec AMAP.

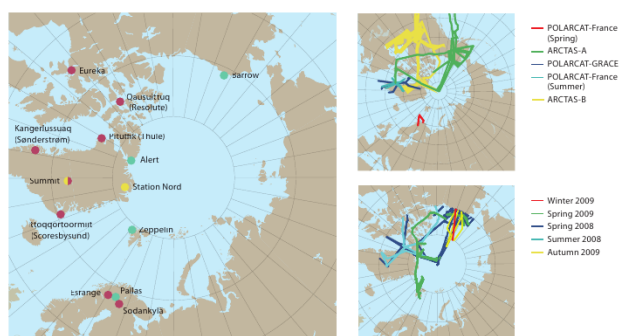


FIGURE 3.4 Localisation des stations de mesures (gauche) et des traces des vols au-delà de 70°N (droite) utilisés dans l'étude AMAP (2015). Les points de couleurs indiquent les types de mesures disponibles (vert : aérosols+gaz ; jaune : aérosols ; magenta : gaz). Source : AMAP (2015).

Dans ECKHARDT et al. (2015), nous avons évalué les concentrations de sulfate et de BC de onze modèles différents, contraints par le même inventaire d'émissions ECLIPSE (KLIMONT et al., 2017), à l'aide d'un jeu de données complet à l'échelle de l'Arctique sur une période de temps de deux ans (2008-2009). Les différences potentielles entre les modèles ne peuvent donc provenir que de différences dans la simulation du transport, du traitement des aérosols (formation des sulfates, vieillissement du BC ...) et du dépôt. L'ensemble des modèles consiste en un modèle de dispersion lagrangienne de particules, quatre modèles de chimie-transport (CTMs) dont WRF-Chem, un modèle de prévision météorologique et chimique et cinq modèles de chimie-climat (CCMs), dont deux étaient guidés par des analyses météorologiques et trois tournaient librement. Le jeu de données mesurées consistait en des mesures surfaciques de BC équivalent (eBC) depuis cinq stations (Alert au Canada (82.5°N, 62.3°O), Barrow en Alaska (71.3°N, 156.6°O), Pallas en Finlande (67.9°N, 24.1°E), Tiksi en Russie (71.6°N, 128.9°E) et Zeppelin/Ny Ålesund au Spitzberg, Norvège (78.9°N, 11.9°E)), de carbone élémentaire (EC) depuis Station Nord au Groenland (81.6°N, 16.7°O) et Alert, et des mesures aéroportées de BC réfractaire (rBC) depuis six campagnes de terrain : deux campagnes ARCTAS, ARCPAC, PAMARCMiP (Polar Airborne Measurements and Arctic Regional Climate Model simulation Project) couvrant tout l'Ouest de l'Arctique en avril 2009 (STONE et al., 2010) et deux campagnes HIPPO (High-Performance Instrumented Airborne Platform for Environmental Research Pole-to-Pole Observations, (SCHWARZ et al., 2010 ; SCHWARZ et al., 2013 ; WOFSY, 2011)) explorant l'Arctique nord-américain en janvier et octobre 2009 (Figure 3.4).

Nous avons d'abord mis en évidence que les modèles reproduisaient désormais mieux les concentrations mesurées de eBC, rBC et de sulfate (Figure 3.5) que dans les comparaisons antérieures (SHINDELL et al., 2008 ; KOCH et al., 2009 ; AMAP, 2011). Par exemple, la moyenne des modèles sous-estime les niveaux de eBC en Arctique à Barrow et Alert d'un facteur 2, alors que cette sous-estimation s'élevait à un ordre de grandeur dans SHINDELL et al. (2008). Ces améliorations notables dans les simulations d'aérosols en Arctique sont le résultat de la prise en compte d'émissions des torchères de gaz (KLIMONT et al., 2017) et de la saisonnalité des émissions (STOHL et al., 2013), mais aussi de la mise à jour de certains processus dans les modèles ces dernières années (FISHER et al., 2011 ; BREIDER et al., 2014 ; SHARMA et al., 2013 ; LUND et BERNTSEN, 2012 ; ALLEN et LANDUYT, 2014). Citons en particulier dans certains modèles une meilleure prise en compte du dépôt humide inefficace dans les nuages de glace (principalement en hiver), du dépôt humide efficace dans les

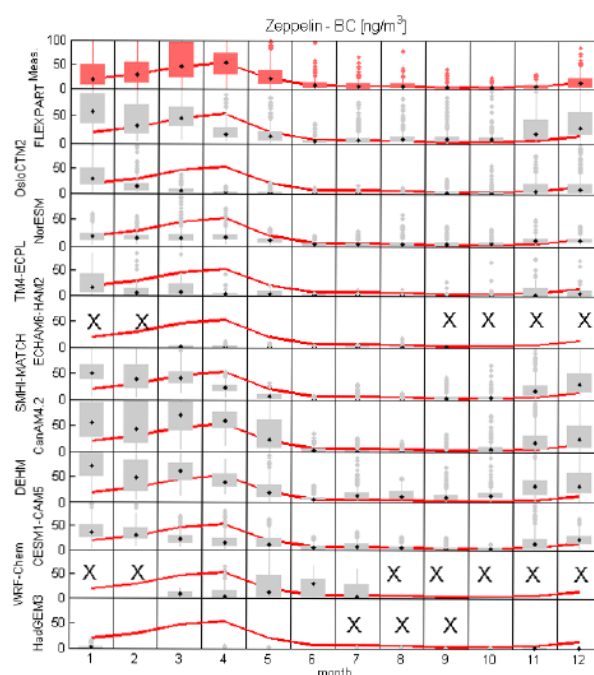


FIGURE 3.5 Cycle annuel des concentrations massiques moyennes de eBC (en ng m^{-3}) observées et simulées à Zeppelin. Sont reportées les distributions mensuelles sous forme de boîtes à moustaches en utilisant les données pour les années 2008 et 2009, en particulier les valeurs médianes mensuelles (noir), les étendues interquartiles (boîtes rouges pour les observations et grises pour les modèles) et les valeurs aberrantes au-delà de 1.5 fois la valeur des premiers et troisièmes quartiles (points rouges ou gris). Source : ECKHARDT et al. (2015).

nuages liquides chauds (majoritairement en été), de l'apparition de nuages chauds engendrant de la bruine dans la CLA à la fin du printemps (BROWSE et al., 2012) et en été (RAUT et al., 2017), et du lessivage humide associé aux nuages convectifs, sans lequel les simulations pouvaient conduire à des surestimations du BC dans l'UTLS (Upper Troposphere - Lower Stratosphere) (ALLEN et LANDUYT, 2014; Q. WANG et al., 2014; RAUT et al., 2017). Les problèmes qui demeurent peuvent aussi être liés à des sources d'émissions manquantes ou à une distribution spatiale et temporelle des émissions dans les inventaires utilisés incorrecte.

Néanmoins, la saisonnalité de l'aérosol en surface est toujours trop faible dans la plupart des modèles. Nonobstant les améliorations, les concentrations de eBC et de sulfate moyennées sur 3 sites de surface dans l'Ouest de l'Arctique sont sous-estimées en hiver et au printemps (janvier-mars) dans tous les modèles, sauf un, de 59% pour le BC et 37% pour le SO_4^{2-} . À l'inverse, les concentrations modélisées en été (juillet-septembre) sont en moyenne surestimées, de 88% pour le eBC et 44% pour le sulfate, mais avec des surestimations et des sous-estimations présentes dans les modèles pris individuellement (Figure 3.5). Les plus fortes sous-estimations de eBC, non incluses dans la moyenne multi-sites mentionnée plus haut, sont obtenues à la station Tiksi en Sibérie, qui est la plus proche des régions sources potentielles en Russie et où la moyenne annuelle des concentrations mesurées est 3 fois supérieure à celle obtenue en moyennant annuellement les valeurs aux autres stations. Cela suggère une sous-estimation des sources de BC en Russie dans l'inventaire d'émissions utilisé, même si cet inventaire contient les torchères de gaz qui sont une source importante de BC dans cette région. Ces résultats sont confirmés par une autre étude (JIAO et al., 2014) qui montre que les concentrations de BC dans la neige sont aussi généralement sous-estimées par les modèles dans le Nord de la Russie, alors qu'elles sont surestimées ailleurs en Arctique. YTRI et

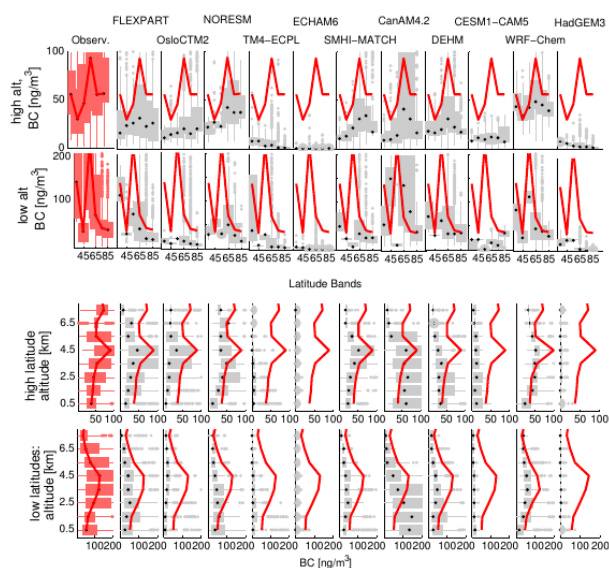


FIGURE 3.6 Concentrations massiques de BC (en ng m^{-3}) modélisées et observées (rBC) pendant les campagnes ARCTAS et ARCPAC au printemps 2008 (médiane, étendue interquartile et valeurs aberrantes). Les deux premières lignes représentent les concentrations médianes de rBC à des altitudes au-dessus et en dessous de 3 km asl (above sea level) en fonction de la latitude (intervalles de 10°). Les deux dernières lignes représentent les valeurs médianes de BC pour les latitudes au Nord et au Sud de 70°N en fonction de l'altitude (par intervalles de 1 km). Source : ECKHARDT et al. (2015).

al. (2014) attribuent ceci, au moins en partie, à une sous-estimation du chauffage au bois résidentiel, en se basant sur des mesures de lévoglucosan effectuées à Zeppelin. Nous avons suggéré dans ECKHARDT et al. (2015) que les émissions de SO_2 au Nord de la Russie étaient aussi sous-estimées.

Lors d'une campagne aéroportée au printemps 2008, une saison marquée par une influence des feux de biomasse prononcée, les sous-estimations de rBC et de sulfate s'étendent sur toute la hauteur de la troposphère, alors que lors d'une campagne au printemps 2009, présentant une influence plus faible des feux de biomasse, certains modèles surestiment les concentrations de rBC les plus basses mesurées (Figure 3.6). Aux stations de surface cependant, des sous-estimations cohérentes sont obtenues pour 2008 et 2009. Il n'est pas toujours évident de savoir si les résultats distincts décrits pour les différentes campagnes aéroportées reflètent des différences dans les stratégies de mesure (par exemple cibler des panaches ou mesurer des concentrations de fond) ou dans les instruments de mesures, ou s'ils reflètent une variabilité atmosphérique bien réelle. Il existe actuellement trop peu d'information disponible sur les profils verticaux de BC dans l'atmosphère arctique pour permettre une validation complète des modèles. Les concentrations de BC et SO_4^{2-} en été à la surface et dans la troposphère sont surestimées pour certains modèles et sous-estimées par d'autres, avec des grandes différences entre les modèles considérés individuellement et une apparente anti-corrélation entre les concentrations modélisées en surface et les contenus en aérosols intégrés sur la colonne troposphérique. Globalement, la saisonnalité du BC simulée dans la troposphère semble trop faible dans la plupart des modèles.

Nous avons trouvé une forte corrélation entre les concentrations de sulfate et de BC observées, avec des pentes sulfate/eBC cohérentes pour toutes les stations en Arctique (Figure 3.7). Cela confirme des études précédentes suggérant que les régions sources contribuant aux sulfates et au BC sont similaires à travers tout l'Arctique (HIRDMAN et al., 2010) et que les aérosols sont en mélange interne et subissent un lessivage similaire (QUINN et al., 2007). Le vieillissement de

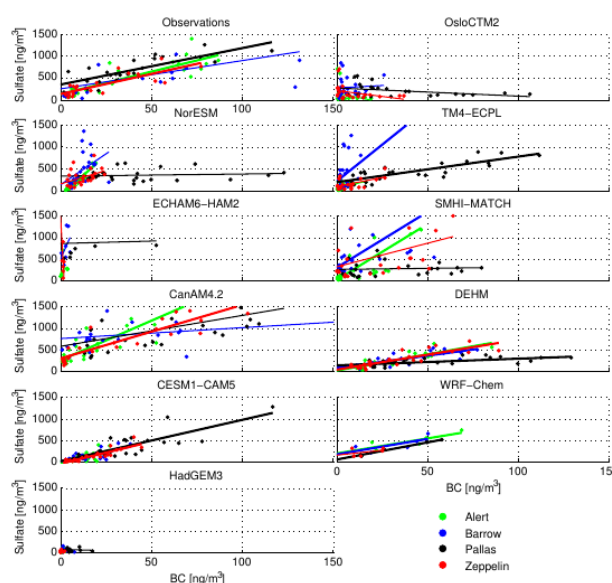


FIGURE 3.7 Corrélation des moyennes mensuelles des concentrations de sulfate et de (e)BC mesurées (premier panneau) et modélisées par les différents modèles aux stations d'observations. Les lignes représentent les corrélations significatives. Source : ECKHARDT et al. (2015).

l'aérosol se traduit dans son état de mélange. Les émissions primaires et les nouvelles particules formées sont initialement en mélange externe. Les processus de coagulation, de condensation, les réactions chimiques hétérogènes entraînent un vieillissement des particules et réduisent la fraction de mélange externe. Le vieillissement change les concentrations en nombre, en masse et la composition chimique. Il modifie aussi les propriétés optiques des CCN, des IN, et joue donc un rôle important dans le bilan radiatif. Cependant, seuls 3 modèles reproduisent ce résultat, tandis que les concentrations de sulfate et de BC ne sont que faiblement corrélées dans les autres modèles (Figure 3.7). Globalement, aucun type de modèles (par exemple CTMs ou CCMs) ne se distingue en termes de performance et les différences sont indépendantes de la résolution des modèles. Par conséquent, les différences sont principalement dues au traitement du dépôt des aérosols dans les modèles. Le lessivage humide demeure la plus grande source d'incertitude dans la représentation des aérosols en Arctique.

3.2.2 Au-dessus de régions sources influençant les concentrations en Arctique

Dans QUENNEHEN et al. (2016), nous avons évalué la capacité de sept modèles (CTMs et ESMs) à simuler les distributions des polluants à courte durée de vie au-dessus de l'Est de l'Asie à l'été 2008. L'étude insiste sur la performance des modèles utilisés pour estimer les impacts présents et futurs des polluants sur le climat et la qualité de l'air dans le cadre du projet ECLIPSE (STOHL et al., 2015). Les modèles ont été généralement guidés vers des (ré-)analyses météorologiques pendant la période d'étude. Utilisant les mêmes émissions anthropiques ECLIPSE (KLIMONT et al., 2017) et de feux de biomasse (GFED-3.1), leurs sorties ont été comparées à différentes échelles spatiales à des observations en surface, au niveau de 3 sites urbains et 5 sites ruraux (Peking University PKU et réseau SNU/EANET (Seoul National University/Acid Deposition Monitoring Network)), à des données aéroportées (campagne CAREBEIJING) de gaz traces collectées au Sud de Pékin et à des observations satellitaires : IASI (CO , O_3), GOME-2 (NO_2), MODIS et CALIPSO (aérosols).

Les profils verticaux des lidars obtenus sous le vent au-dessus du Japon à partir du réseau NIES (Japanese National Institute for Environmental Studies) et les données satellitaires ont été utilisées pour estimer le comportement des modèles sur des échelles régionale et continentale dans la basse troposphère mais aussi dans la colonne atmosphérique totale.

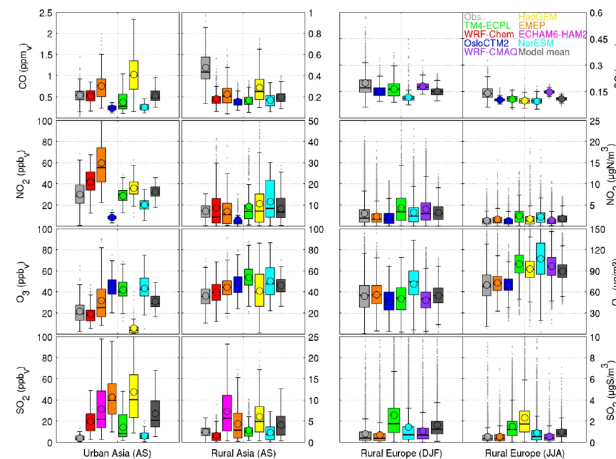


FIGURE 3.8 Boîtes à moustaches représentant la distribution des rapports des mélange et les concentrations de CO, NO₂, O₃ et SO₂ mesurés et modélisés, représentatifs de stations de fond en zones urbaines et rurales dans l'Est de l'Asie en août-septembre 2008, et en zones rurales en Europe à l'hiver et à l'été 2008. Les cercles et les lignes centrales représentent des moyennes et les médianes, respectivement. Les boîtes montrent l'étendue interquartile. Source : STOHL et al. (2015)

Les modèles présentent systématiquement des biais positifs pour l'ozone, particulièrement aux stations de surface rurales et en comparaison des données satellitaires en aval des principales régions d'émissions en Chine et sous le vent au-dessus du Pacifique (Figure 3.8). Plusieurs modèles prédisent des concentrations d'ozone trop grandes au-dessus des régions polluées, qui sont ensuite transportées sous le vent. Les causes d'écart sur l'ozone diffèrent entre les modèles mais sont liées notamment à leur capacité à simuler les régimes saturés et limités en NO_x (le terme « limité par les COV » s'emploie également couramment pour désigner le premier régime, bien que la concentration en COV ne soit jamais en quantité suffisamment faible pour véritablement « limiter » la production d'O₃) dans les environnements pollués et peu pollués, respectivement. Il peut également exister des biais sur le NO₂ mesuré par satellite, soulignant une sous-estimation des émissions de NO_x au-dessus de la Corée du Sud et du Japon et une sous-estimation (surestimation) des émissions vers l'Ouest (l'Est) de la région des plaines du Nord en Chine (Figure 3.8). La surestimation de l'O₃ est associée à une sous-estimation systématique du CO, notamment au niveau des sites ruraux et sous le vent des principales régions d'émissions en Chine. Cela est principalement causé par la destruction excessive de CO par OH, suggérant que le temps de vie du CO est trop court (Figure 3.8). Tous ces résultats soulignent le besoin d'utiliser une résolution numérique adéquate pour améliorer les réponses des simulations aux émissions lors du passage de régions de titration à des régions de production d'ozone entre les larges conurbations polluées, leurs alentours et les régions sous le vent. La surestimation d'O₃ asiatique et son transport en aval impliquent que le forçage radiatif de cette source pourrait être surestimé. Les analyses de sensibilité que nous avons conduites à l'aide du modèle WRF-Chem suggèrent que la réduction des émissions à Pékin pendant les Jeux Olympiques à l'été 2008 n'est pas en mesure d'expliquer les écarts entre modèles et observations.

Une comparaison similaire a été réalisée au-dessus de l'Europe grâce aux mesures en surface reportées aux stations du réseau EMEP (European Monitoring and Evaluation Programme) (Figure 3.8). Globalement, au-dessus de l'Europe, la moyenne des modèles ECLIPSE reproduit les observations moyennes, à l'exception du CO en été qui est sous-estimé (comme en Asie). L'ozone en été est surestimée par de nombreux modèles aux stations rurales au-dessus de l'Europe et de l'Asie, suggérant une production photochimique trop importante en aval des zones d'émissions.

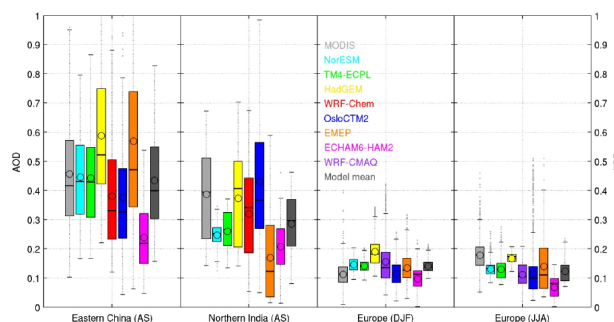


FIGURE 3.9 Comparaison des AOD à 550 nm observées par MODIS et modélisées au-dessus de l'Est de la Chine et du Nord de l'Inde en août-septembre 2008, et de l'Europe à l'hiver et l'été 2008. Les cercles et les lignes centrales représentent des moyennes et des médianes, respectivement. Les boîtes montrent l'étendue interquartile. Source : STOHL et al. (2015)

En ce qui concerne les aérosols, la plupart des modèles reproduisent les structures d'AOD déduites des satellites au-dessus de l'Est de la Chine et de l'Europe (Figure 3.9). Notre étude révèle néanmoins une surestimation au voisinage de la surface des aérosols de BC et de sulfate modélisés dans les zones urbaines en Chine à l'été 2008 (Figure 3.10). L'effet des mesures de réduction à court terme des émissions à Pékin pendant les Jeux Olympiques de 2008 est trop faible pour expliquer les différences entre les modèles et les observations. Nos résultats indiquent davantage une surestimation des émissions au voisinage de la surface dans les zones urbaines de Chine, en particulier du SO_2 (Figure 3.8). Une cause possible est le changement radical de la distribution spatiale des émissions des centrales de production d'énergie pendant la dernière décennie en Chine (F. LIU et al., 2015), une modification qui n'avait pas été prise en compte dans l'inventaire d'émissions utilisé dans cette étude (ECLIPSE-v4a). Cela peut être aussi lié au fait que les émissions associées à la production d'énergie sont en réalité localisées en dehors des limites urbaines mais deviennent intégrées aux mailles urbaines larges des modèles globaux (STOHL et al., 2015). Au-dessus de l'Europe, les modèles simulent de manière satisfaisante les observations de BC en surface à la fois en hiver et en été (Figure 3.9). Cependant, nous avons aussi identifié une forte sous-estimation des contenus en aérosols au Nord de l'Inde (Figure 3.9), ce qui sous-entend que la croissance récente rapide des émissions en Inde (KLIMONT et al., 2013) et leur extension spatiale étaient sous-estimées dans les inventaires d'émissions, dont ECLIPSE-v4a. Des améliorations ont par conséquent été introduites dans une version ultérieure (ECLIPSE-v5) qui a été utilisée pour les simulations climatiques. En l'occurrence, l'inclusion des émissions des lampes à pétrole en Inde a amélioré l'accord avec les observations (GADHAVI et al., 2015). Les difficultés des modèles à représenter l'accumulation de polluants due à la mousson indienne peuvent également jouer un rôle.

Pour étudier la distribution verticale des couches d'aérosols, nous avons effectué une comparaison avec des profils verticaux lidar mesurés en termes de rapports de diffusion atténués

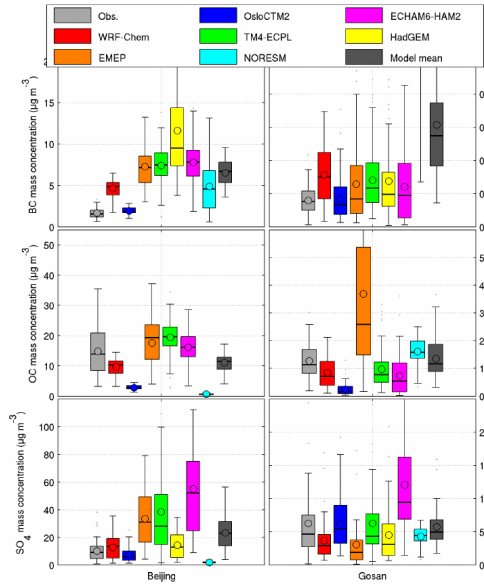


FIGURE 3.10 Comparaison des boîtes à moustaches représentant les distributions de BC, OC et SO_4^{2-} observées et moyennées : moyenne (cercle), médiane (trait central) et étendue interquartile (bords des boîtes). Les moustaches couvrent les valeurs excédant 1.5 l'étendue interquartile (> 99% des valeurs d'un échantillon normalement distribué). Source : QUENNEHEN et al. (2016).

$R_{att}(z) = \frac{\beta(z)}{\beta_m(z)} \exp \left(-2 \int_{z_{ref}}^z \alpha_p(z') dz' \right)$, c'est-à-dire de coefficients de rétrodiffusion volumique totale β normalisée au Rayleigh β_m , seulement atténués par l'extinction des aérosols α_p . Ce choix de R_{att} plutôt que de α_p permet d'éviter des hypothèses potentiellement erronées sur les rapports lidar $\frac{\alpha_p}{\beta_p}$ utilisés dans les inversions lidar (YOUNG et M. A. VAUGHAN, 2009) et que les faibles rapports signal-sur-bruit n'entraînent une mauvaise identification des couches d'aérosols, notamment à proximité de la surface (OMAR et al., 2010). Cette comparaison a mis en évidence une sous-estimation générale des aérosols diffusants dans la CLA et une surestimation dans la troposphère libre, suggérant que les temps de vie des aérosols modélisés sont trop longs (Figure 3.11). Cela est vraisemblablement lié à un transport vertical trop intense ou à une efficacité de dépôt insuffisante pendant le transport ou l'export depuis la CLA, plutôt qu'à un vieillissement chimique (dans le cas des aérosols de sulfate). La sous-estimation du sulfate dans la CLA implique potentiellement des erreurs considérables dans la simulation des interactions aérosols-nuages, via des impacts sur les nuages de CLA.

3.3 Conclusions du chapitre

Nous avons montré qu'en Arctique les modèles affichaient des performances très contrastées pour simuler les augmentations en polluants à la surface (ECKHARDT et al., 2015; MONKS et al., 2015) et leurs profils verticaux, notamment pour les composants des aérosols (AMAP, 2015; ECKHARDT et al., 2015) et les précurseurs d'ozone comme les composés azotés réactifs (L. EMMONS et al., 2015; S. R. ARNOLD et al., 2015). Une piètre performance des modèles en Arctique impliquerait un manque de confiance dans les prédictions relatives à la qualité de l'air et au climat aux hautes latitudes en réponse aux changements dans les émissions dans l'hémisphère Nord. Un résultat important des évaluations multi-modèles que nous avons conduites est que les ESMs présentent un

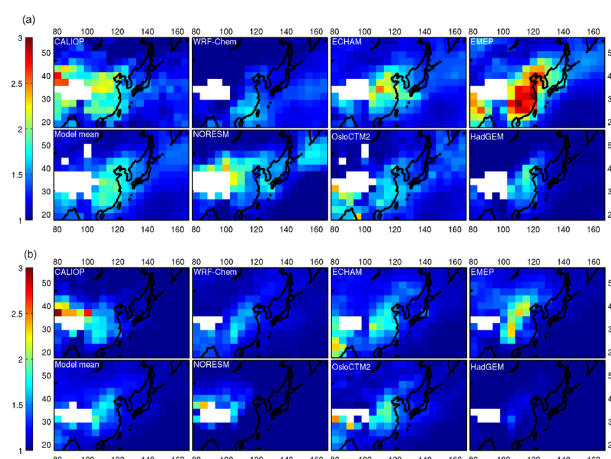


FIGURE 3.11 Comparaison entre les rapports de diffusion atténués (R_{att}) au-dessus de l'Asie en août et septembre 2008, moyennés sur des boîtes lat/lon de $2^\circ \times 5^\circ$ et sur des couches de 0 – 2 km (a) et 2 – 4 km (b), obtenus à partir des données CALIOP et simulés par les modèles ECLIPSE. Source : QUENNEHEN et al. (2016).

niveau de performance similaire à celui des CTMs globaux (pas régionaux). Cela est encourageant car les ESMs visent à inclure les rétroactions chimie-climat et sont utilisés pour déterminer les impacts des polluants à courte durée de vie sur le climat et la qualité de l'air aux échelles régionale et globale (STOHL et al., 2015). Idéalement, les modèles devraient tourner à des résolutions plus fines au-dessus des régions sources afin de mieux simuler les gradients de polluants urbains et ruraux (sous le vent) et les régimes chimiques, et également pour mieux résoudre les transformations des polluants et la perte par dépôt humide et le transport vertical.

Des écarts dans les distributions verticales requièrent une quantification plus approfondie et une amélioration, étant donné qu'elles sont un facteur clé de la détermination du forçage radiatif des polluants à courte durée de vie. En région arctique, cette mauvaise performance provient de processus mal contraints ou interdépendants. Nous avons mis en évidence que la représentation des processus physiques liés aux aérosols et aux nuages et au vieillissement chimique (dépôt humide lors de l'ascendance des masses d'air à proximité des régions sources ou au niveau du front arctique, oxydation, microphysique) est la principale source d'erreur dans la modélisation des distributions d'aérosols en Arctique (ECKHARDT et al., 2015). Nos évaluations de modèles ont aussi conduit à améliorer l'inventaire d'émissions ECLIPSE, notamment en incluant des émissions plus importantes pour les lampes à kérosène dans le Nord de l'Inde. D'autres améliorations que nous avons suggérées dans ECKHARDT et al. (2015), comme un nouveau maillage des émissions des fonderies non ferreuses pour améliorer les émissions de SO_2 en Russie, ont été obtenues trop tardivement pour les simulations d'impact climatique dans le projet ECLIPSE (STOHL et al., 2015), mais elle figurent dans la version officielle distribuée de l'inventaire d'émissions ECLIPSE.

Nos résultats ont été intégrés et publiés dans le rapport international AMAP (2015) qui fait actuellement référence sur l'évaluation du BC et de l' O_3 comme sources de forçage du climat en Arctique. Ce rapport nourrit directement les discussions de Conseil de l'Arctique, dont la France est un pays observateur, sur les scénarios potentiels de réduction des émissions de manière à ralentir le réchauffement en Arctique. Nos travaux ont également contribué à la création d'une nouvelle initiative internationale sur la pollution de l'air en Arctique (PACES : air Pollution in the Arctic : Climate, Environment, Societies, <http://www.igacprojects.org/PACES>) sous les auspices de IGAC

(International Global Atmospheric Chemistry) et du comité IASC (International Arctic Science Committee). PACES facilite la coordination des observations de la pollution atmosphérique et des études de modélisation associées avec d'autres programmes de recherche internationaux sur la météorologie, le climat et l'océanographie en région arctique. Cela inclut le programme PPP (Polar Prediction Project, <http://polarprediction.net>) de WWRP (World Weather Research Programme) développé au sein de WMO (World Meteorological Organization). Le PPP favorise la recherche coopérative internationale pour permettre le développement de services de prédiction météorologique et environnementale améliorés en régions polaires sur des échelles de temps de l'heure à la saison.

Impact des émissions anthropiques locales émergentes sur la qualité de l'air et le climat en Arctique

Cette section s'appuie sur les travaux publiés dans ROIGER et al. (2015), MARELLE et al. (2016), TUCCELLA et al. (2017), LAW et al. (2017), CHAZETTE et al. (2018) et DASKALAKIS et al. (2020).

La pollution atmosphérique en Arctique trouve principalement son origine dans les émissions des régions aux latitudes moyennes. Mais elle peut être également liée à des sources locales dont la tendance est à la hausse. Étant donné le caractère extrêmement rapide du changement climatique en Arctique et les pressions économiques globales qui l'accompagnent, l'industrialisation accélérée en Arctique est déjà en cours avec l'ouverture de nouvelles routes maritimes plus courtes en été le long du passage du Nord-Est et avec le fort attrait pour l'exploitation de nouvelles ressources gazières et pétrolières et l'exploration minière en Alaska, au Groenland et en Eurasie du Nord. La construction de navires polaires brise-glaces capables de traverser la glace de mer en été au Pôle Nord est évoquée (Figure 4.1). Les émissions locales peuvent déjà influencer la composition et le climat en Arctique (par exemple via les émissions des torchères et des combustions résidentielles en Eurasie, les navires de croisière au Svalbard). Une croissance significative des sources locales associée à une urbanisation grandissante est susceptible de modifier les concentrations de gaz traces et d'aérosols et, par conséquent, la qualité de l'air à l'échelle régionale et le climat. Les panaches émis localement par les bateaux, lors de l'extraction de gaz ou de pétrole ou pendant les activités de pêche, contiennent une proportion significative de composés soufrés ou azotés, de particules carbonées et d'aérosols organiques secondaires produits pendant le transport à partir des gaz émis. Ces émissions locales en Arctique sont potentiellement capables de jouer un rôle plus grand qu'estimé et sont susceptibles de croître de façon considérable dans le futur proche ou moyen. Certaines études récentes suggèrent même que les émissions locales pourraient avoir une influence plus importante que le transport à longue distance sur le forçage radiatif (direct et indirect). Ce poids croissant des émissions locales pourrait enfin être renforcé par les changements de circulation atmosphérique et par l'augmentation globale des précipitations, qui réduisent l'efficacité du transport de pollution vers l'Arctique (JIAO et M. FLANNER, 2016).

Nous avons d'abord cherché à caractériser les sources de pollution locale en Arctique liées aux développements économiques de l'Arctique, présents et futurs (nouvelles routes maritimes, exploitation des ressources énergétiques, activités industrielles, urbanisation), par une approche couplant observations et amélioration des processus dans les modèles. Nous nous sommes en particulier appuyés sur les mesures collectées par le Falcon au cours de la campagne ACCESS pendant

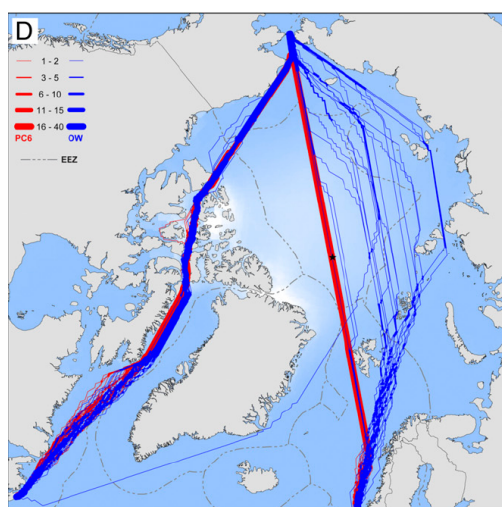


FIGURE 4.1 Routes de navigation optimales en septembre reliant les océans Atlantique et Pacifique via l'océan Arctique entre 2040 et 2059 suivant les prédictions d'extension et d'épaisseur de la banquise selon le scénario de changement climatique RCP8.5. Les lignes rouges et bleues indiquent les routes trans-arctiques disponibles les plus rapides pour les bateaux PC6 (Polar Class 6) et OW (Open-water) respectivement. Source : SMITH et STEPHENSON (2013).

l'été 2012, permettant de documenter les émissions de différents bateaux (navires transportant des marchandises (cargos) ou des personnes, ou bateaux de pêche) et plusieurs installations d'extraction offshore (plateformes de forage, de production ou de stockage) au large de la côte norvégienne (ROIGER et al., 2015). Ces résultats nous ont ensuite permis d'estimer à partir du modèle WRF-Chem les impacts de la pollution locale sur la qualité de l'air pour les populations locales, les écosystèmes arctiques et finalement le climat. La Figure 4.2 montre l'ensemble des plans de vols ACCESS, effectués dans la région arctique définie par AMAP, qui incorpore des éléments du cercle arctique, des frontières politiques et des structures géographiques majeures (AMAP, 1998).

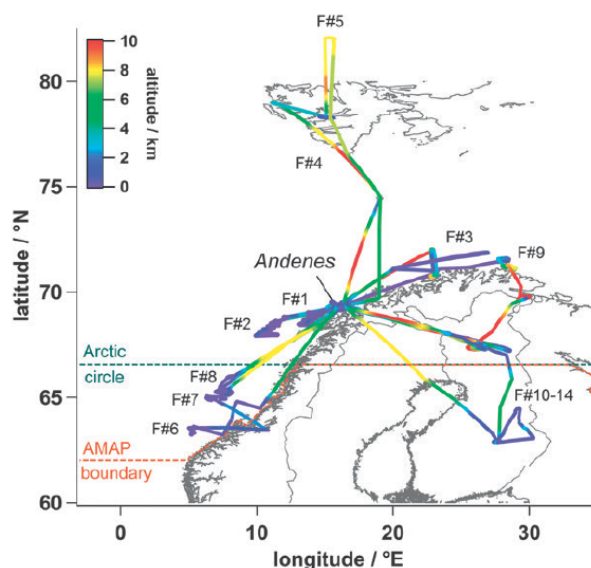


FIGURE 4.2 Ensemble des 14 plans de vol de la campagne ACCESS autour de la base d'Andenes, en Norvège, dont la couleur indique l'altitude de vol. La région AMAP (orange) et le cercle arctique (turquoise) sont aussi indiqués. Source : ROIGER et al. (2015).

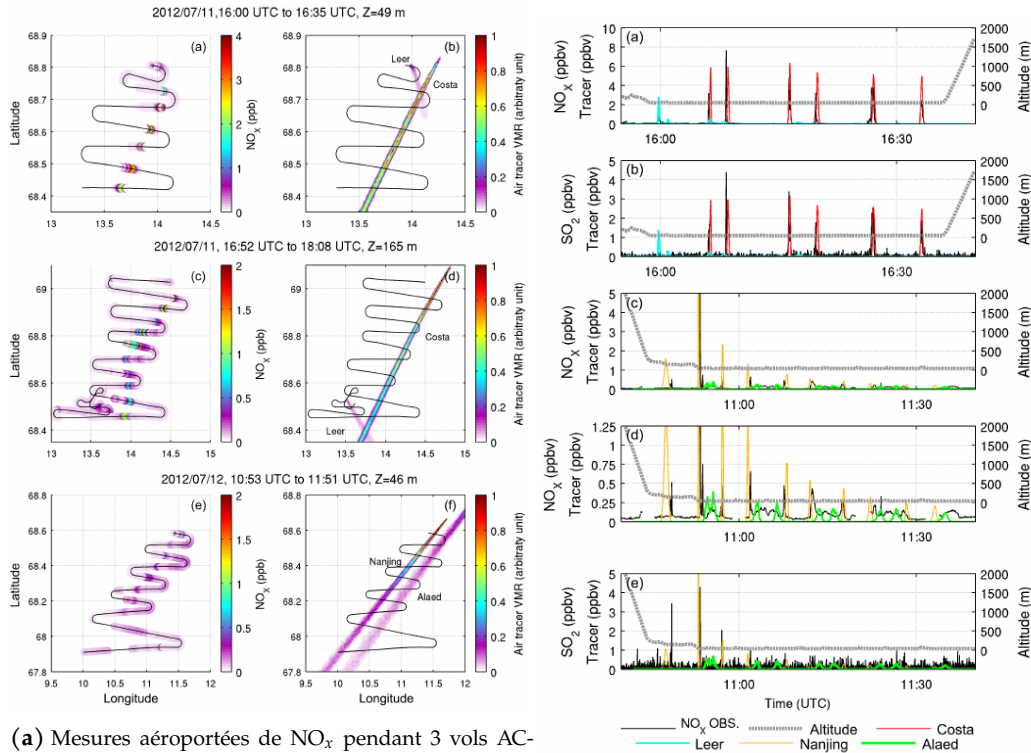
4.1 Impact des émissions issues du trafic maritime

Une activité industrielle importante et en plein développement en Arctique est le trafic maritime local (navires de pêche, de transport de passagers ou de ravitaillement local) et international (vraquiers et tankers) (CORBETT et al., 2010; G. P. PETERS et al., 2011). Les routes de navigation qui traversent l'Arctique présentent un fort intérêt économique en raison de plus courtes distances de transport (par rapport à celles empruntant le canal de Suez) et d'économies sur les coûts de carburant (M. LIU et KRONBAK, 2010). Le transport maritime depuis l'Europe vers l'Asie à travers l'Arctique via le Passage du Nord-Est (aussi appelé « route maritime du Nord »), le long des côtes Nord de la Scandinavie et de la Russie, reliant Mourmansk au détroit de Béring, se met déjà en place en raison de la réduction drastique de l'étendue de la banquise pendant l'été. Les émissions des bateaux peuvent aussi conduire à la production de composés acides, comme les aérosols de nitrate et de sulfate, qui sont très solubles et peuvent être déposés sur les écosystèmes continentaux et marins, avec des impacts potentiels sur les cycles biogéochimiques en Arctique.

4.1.1 Quantification et évaluation des émissions de bateaux

Dans MARELLE et al. (2016), nous quantifions les effets atmosphériques de la pollution des bateaux sur la qualité de l'air et l'effet radiatif SW aux courtes longueurs d'onde au Nord de la Norvège en juillet 2012. Dans le cadre de la campagne aéroportée ACCESS, basée à Andøya, en Norvège, des mesures d'émissions (échantillonnage de panaches) ont été réalisées ciblant des bateaux localisés au large de la côte norvégienne, en transit depuis ou vers Mourmansk, en Russie. L'étude visait à évaluer la formation d'ozone et d'aérosols, les transformations physico-chimiques dans les jeunes panaches de pollution des bateaux, ainsi que leurs effets à l'échelle régionale. Plus spécifiquement, nous avons utilisé un inventaire des émissions du trafic maritime, STEAM2 (Ship Traffic Emissions Assessment Model, version 2), qui représente les bateaux individuellement grâce aux données AIS (Automatic Information System) de leur positionnement en temps réel à haute résolution (JALKANEN et al., 2012). STEAM2 calcule la consommation de carburant pour chaque bateau à partir de sa taille, de sa vitesse, du type de moteur, de carburant, de propulseur, prend en compte l'effet des vagues et distingue les bateaux à l'ancre, à la manœuvre et les bateaux de croisière. Les émissions « bottom-up » de NO_x et de SO_2 déterminées grâce à STEAM2 pour des bateaux spécifiques (4 bateaux pendant ACCESS) ont d'abord été comparées aux émissions déduites des mesures aéroportées ACCESS dans les panaches de ces bateaux et des résultats du modèle FLEXPART-WRF de dispersion des panaches (Figure 4.3). En second lieu, des simulations régionales WRF-Chem prenant en compte, ou non, les émissions de bateaux STEAM2 sont effectuées à deux résolutions différentes, $3 \times 3 \text{ km}^2$ et $15 \times 15 \text{ km}^2$ et évaluées grâce aux mesures le long des traces des vols et aux profils moyens de la campagne dans la couche limite marine et la basse troposphère (Figure 4.4).

Les résultats montrent que des biais importants sont possibles pour des bateaux individuels dans STEAM2 (-57 à $+148\%$), notamment pour ceux dont les données techniques sont incomplètes ou pour lesquelles les technologies de réduction des émissions ont été mises en place (Figure 4.3). Néanmoins, l'association de simulations WRF-Chem aux émissions STEAM2 conduit à des prédictions raisonnables de NO_x , SO_2 et O_3 en comparaison des profils ACCESS dans la basse



(a) Mesures aéroportées de NO_x pendant 3 vols ACCESS (a,c,e) et panaches correspondants (en rapport de mélange de traceur relatif) simulés par FLEXPART-WRF (b, d, f) aux temps et niveaux verticaux les plus proches, pour 4 bateaux individuels (Wilson Leer, Costa Deliziosa, Wilson Nanjing et Alaed).

(b) Mesures de NO_x et SO_2 (noir) comparées aux rapports de mélange de traceurs simulés par FLEXPART-WRF interpolés au long des vols pour les panaches de 4 bateaux (couleur). (d) est un zoom des résultats de (c).

FIGURE 4.3 Source : MARELLE et al. (2016).

troposphère (biais normalisés de +14.2, -6.8 et -7.0%, respectivement) (Figure 4.5). Ces résultats indiquent également que les émissions de bateaux contiennent une source significative de NO_x et SO_2 dans les basses couches pendant les vols ACCESS, bien que l'échantillonnage de panaches de bateaux spécifiques au voisinage de la surface ait été exclu de ces profils. La pollution collectée pendant ces vols représente donc la pollution des bateaux ayant eu le temps de se mélanger verticalement dans la couche limite marine et est avant tout représentative de la pollution régionale due aux bateaux au Nord de la Norvège.

4.1.2 Impact du trafic maritime sur les concentrations de polluants

En termes de modélisation, nous avons cherché à déterminer les processus de dilution des émissions et de mélange des polluants issus des sources locales, à analyser les transformations physico-chimiques et le vieillissement de l'aérosol dans les panaches. Ces processus apparaissant généralement à une échelle bien plus fine que celle envisagée dans les modèles à méso-échelle conduisant à une dilution excessive des concentrations, nous nous sommes attachés à étudier l'influence de la résolution horizontale et verticale du modèle sur la reproduction des panaches. La simulation WRF-Chem à haute résolution ($3 \times 3 \text{ km}^2$) est meilleure pour représenter les pics de NO_x mesurés et suggère une titration d'ozone dans les panaches de bateaux, mais les augmentations de NO_x et d' O_3 dues au trafic maritime dans les deux simulations diffèrent de moins de 5% lorsqu'elles sont moyennées sur tout le domaine pendant la période de simulation (Figure 4.4). La

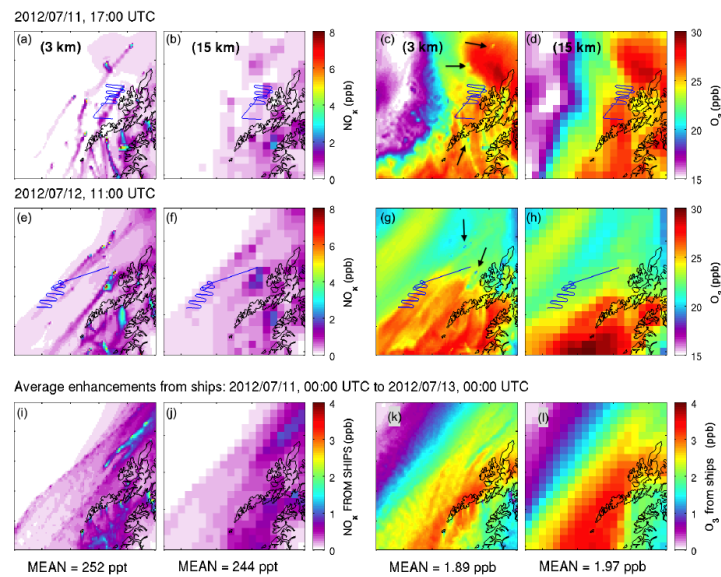


FIGURE 4.4 Rapports de mélange de NO_x et O_3 en surface pour les simulations à 3 et 15 km de résolution pendant les vols des 11 et 12 juillet 2012. Les traces des vols sont en bleu et les flèches noires indiquent plusieurs zones de titration d' O_3 associées aux fortes concentrations de NO_x en provenance des bateaux. En bas : augmentation en surface moyennes sur 2 jours de NO_x et d' O_3 dues aux émissions des bateaux. Source : MARELLE et al. (2016).

simulation à $3 \times 3 \text{ km}^2$ reproduit également les augmentations de PM_{10} dans les panaches de bateaux. Les augmentations de PM_{10} à la surface liées aux bateaux ne sont que modérément sensibles à la résolution : elles sont de 15% supérieures dans la simulation à $3 \times 3 \text{ km}^2$.

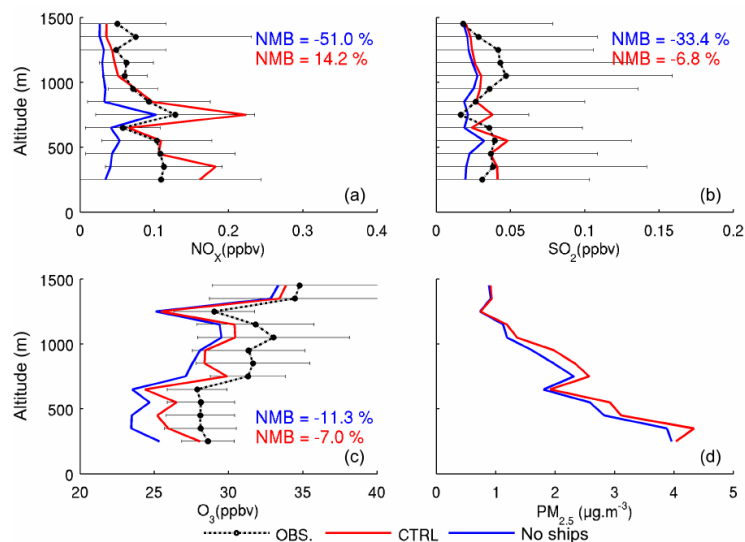


FIGURE 4.5 Profils verticaux moyens de NO_x , SO_2 , O_3 et $\text{PM}_{2.5}$ observés pendant les 4 vols ACCESS dédiés aux bateaux (en noir) et interpolés le long des vols pour les simulations avec (rouge) et sans (bleu) émissions de bateaux. Source : MARELLE et al. (2016).

Les simulations WRF-Chem à 15 km de résolution ont été utilisées pour estimer les impacts régionaux de la pollution des bateaux au Nord de la Norvège. Les résultats des simulations avec et sans émissions de bateaux sont comparés aux profils moyens de la campagne, en excluant les vols dédiés aux plateformes pétrolières, aux fonderies et aux émissions de feux de biomasse (chapitre 2) extérieures au domaine des simulations (Figure 4.5). Les émissions de bateaux ont déjà un impact important sur la composition atmosphérique le long de la côte norvégienne, augmentant,

en moyenne sur 15 jours, les concentrations surfaciques d'environ 80% pour les NO_x , 80% pour le SO_2 , 5% pour O_3 , 40% pour le BC et 10% pour les $\text{PM}_{2.5}$ (Figure 4.6). Nos résultats utilisant un modèle régional prédisent une production d'ozone due aux bateaux inférieure à des études antérieures basées sur des modèles globaux. Il est toutefois connu que les modèles globaux tournant à basse résolution tendent à surestimer la production d' O_3 ou à sous-estimer la titration d' O_3 , provenant des émissions jeunes de bateaux à cause des non-linéarités introduites en diluant les émissions concentrées des bateaux dans des mailles de modèles grossières. Le temps de résidence du BC provenant des émissions de bateaux a été estimé à 1.4 jours. Sur la même période de 15 jours, les émissions des bateaux au Nord de la Norvège ont eu un effet radiatif SW global (direct + semi-direct + indirect) de -9.3 mW m^{-2} (chapitre 5).

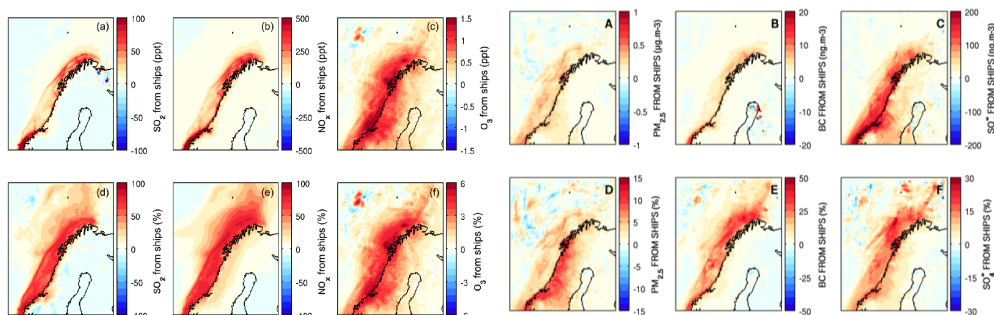


FIGURE 4.6 Moyenne sur 15 jours des augmentations relatives absolues (en haut) et relatives (en bas) de SO_2 , NO_x , O_3 , $\text{PM}_{2.5}$, BC et SO_4^{2-} à la surface dues aux émissions de bateaux au Nord de la Norvège. Source : MARELLE et al. (2016).

4.1.3 Impact du trafic maritime sur les dépôts acides

Dans le cadre du projet européen ICE-ARC, nous nous sommes intéressés à la mer de Barents, caractérisée par un trafic maritime important tout au long de l'année, soit sous la forme de transit vers la Russie, ou bien lié à l'industrie de la pêche. Localisée au large des côtes Nord de Norvège et de Russie, elle possède un taux de productivité océanique remarquable et des stocks de pêche considérables, de même que des ressources naturelles significatives comme le pétrole et le gaz (AMAP, 2017). Son trafic maritime est susceptible de croître dans une région arctique qui se réchauffe, à cause des bénéfices économiques associés à l'ouverture du Passage du Nord-Est, la plaçant dans une position stratégique pour le transport des marchandises entre l'Europe et l'Asie (CORBETT et al., 2010; WINTHER et al., 2014). Dans DASKALAKIS et al. (2020), nous avons examiné l'influence des émissions de bateaux en mer de Barents sur la composition atmosphérique régionale pendant la période estivale (juillet-août), caractérisée par un fort trafic, en utilisant le modèle WRF-Chem à haute résolution (20 km). Nous avons quantifié les effets de la pollution du trafic maritime sur les concentrations en aérosols de sulfate et de nitrate, ainsi que sur le dépôt de ces nutriments potentiellement importants pour les écosystèmes. Le modèle a utilisé un mécanisme de chimie analytique pour la phase gazeuse SAPRC99-VBS (Statewide Air Pollution Research Center, 1999 version (CARTER, 2000)), le schéma sectionnel d'aérosols à 16 classes de taille MOSAIC (ZAVERI et al., 2008)), les émissions anthropiques de ECLIPSE-v5 et les émissions des bateaux de WINTHER et al. (2014) de 2012 basées sur les données satellitaires de positionnement des bateaux en temps réel AIS. Ces dernières incluent les émissions de polluants issus des navires de pêche,

qui ne figuraient pas dans les inventaires précédents. Les résultats indiquent que le trafic maritime en Arctique influence déjà la composition atmosphérique de la région, affectant les concentrations d’ozone, de nitrate et de sulfate (Figure 4.7). Des effets significatifs des émissions de bateaux ont été notés pour l’ozone, allant jusqu’à 9 ppbv localement, en raison de faibles niveaux de fond en oxydes d’azote. En revanche, le trafic maritime ne représente actuellement qu’une modeste contribution aux concentrations massiques de l’aérosol ($\sim 10\%$) (Figure 4.7).

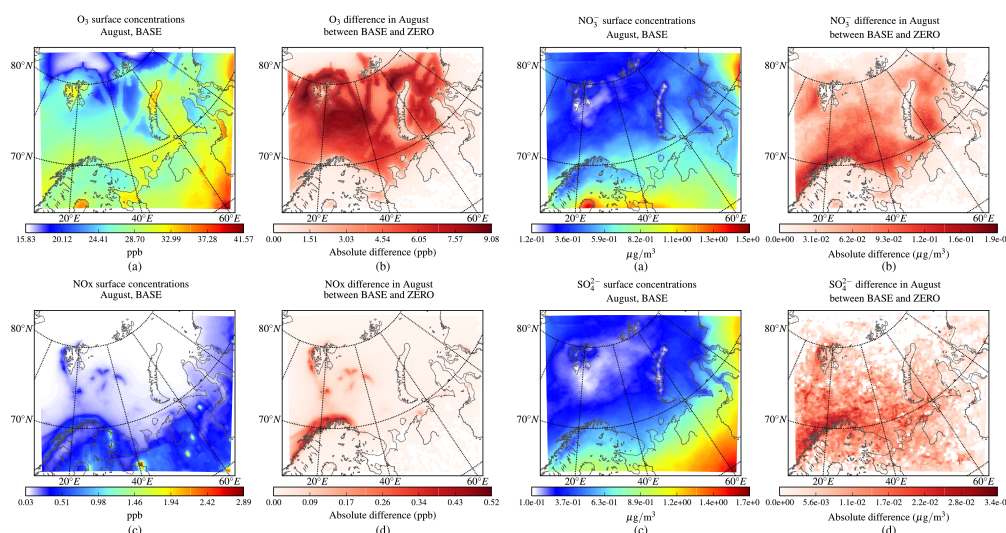


FIGURE 4.7 Concentrations d’ O_3 , de NO_x , de NO_3^- et de SO_4^{2-} en 2012 et différences absolues entre simulations avec et sans émissions de bateaux. Source : DASKALAKIS et al. (2020).

Nous avons aussi examiné plusieurs scénarios de croissance future (2050) de la navigation prenant en compte les réglementations actuelles et proposées sur le trafic maritime, comme BAU (Business As Usual) et HGS (High Growth Scenario), pour étudier les changements futurs possibles sur les concentrations en surface, les contenus troposphériques intégrés et les flux de dépôt. Nous avons enfin pris en compte les routes de diversion proposées par CORBETT et al. (2010) via le Passage du Nord-Est, où 5% du trafic mondial global est détourné en 2050 et des simulations de sensibilité à partir des mêmes scénarios (BAU et HGS) mais avec des largeurs plus réalistes des routes de diversion (100 km plutôt que 20 km, correspondant à une maille dans nos simulations). En se basant sur des scénarios d’émissions disponibles, des augmentations significatives d’ O_3 et de NO_3^- peuvent apparaître à l’avenir, notamment dans l’éventualité d’une diversion du trafic maritime via l’Arctique. De légères augmentations des concentrations en ozone (0.1 ppbv) sont notées dans le scénario HGS, principalement au large de la côte Nord (Figure 4.8). Les plus fortes augmentations, jusqu’à 5 ppbv, sont observées sur les routes de diversion, notamment dans les régions présentant de faibles niveaux de fond en NO_x . Élargir la zone de diversion des émissions (de 20 à 100 km) revient à étendre la région de titration d’ O_3 au Nord de la Norvège et à augmenter la production d’ O_3 dans les régions où les niveaux de fond en NO_x sont faibles (Figure 4.8). Les rapports de mélange de NO_3^- sont réduits au centre de la mer de Barents dans le scénario BAU, en raison d’émissions de NO_x légèrement inférieures ; ils sont à l’inverse supérieurs de 10% dans le scénario HGS en réponse aux émissions de NO_x plus fortes dans les routes de navigation, en particulier au large des côtes norvégiennes (Figure 4.8). Les changements en SO_4^{2-} sont plus difficiles à distinguer à cause de rétroactions entre CCN et nuages : l’effet est important localement (30%), mais il se

superpose à la variabilité interne du modèle. Comme pour l’ozone, les plus fortes augmentations sont obtenues dans le scénario HGS avec diversion des bateaux ($\sim 100\%$ pour NO_3^- , $30 - 40\%$ pour SO_4^{2-}) (Figure 4.8). Les augmentations d’ozone et d’aérosols prédites, potentiellement importantes localement, pourraient donc avoir une influence sur les niveaux de fond des polluants atmosphériques et, par conséquent, sur la santé humaine, particulièrement dans des régions où la densité de population est plus grande, comme le Nord de la Russie.

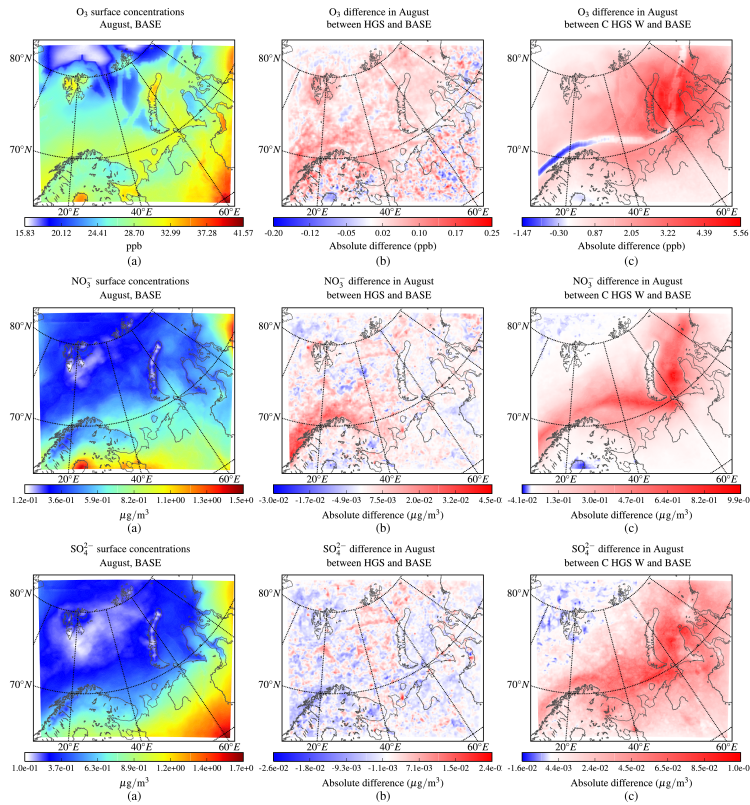


FIGURE 4.8 Moyennes mensuelles (en août 2012) des concentrations surfaciques d’ O_3 , de NO_3^- et de SO_4^{2-} et différences absolues entre simulations actuelle et future des scénarios HGS avec ou sans diversion. Source : DASKALAKIS et al. (2020).

Notre étude a également montré qu’une navigation renforcée en Arctique risque d’augmenter le dépôt de composés acides solubles, comme les aérosols de nitrate et de sulfate, affectant les écosystèmes marins locaux, avec des implications potentielles sur la biogéochimie marine et la productivité primaire océanique (JONSON et al., 2015; AKSOYOGU et al., 2016), l’azote étant en particulier un nutriment limitant pour cette productivité marine (BAKER et al., 2017). Cela se vérifie particulièrement en mer de Barents, pendant l’été, lorsque les eaux de surface sont appauvries en nutriments. Les plus forts impacts ($\sim 100\%$) sur le dépôt ont été obtenus lorsque la diversion des routes maritimes était incluse (Figure 4.9). Le principal puits des aérosols de sulfate et de nitrate est le dépôt humide, tandis que le dépôt sec est négligeable pour les sulfates. Les niveaux critiques de composés acides déposés à la surface, en provenance des bateaux, pourraient être dépassés le long des zones côtières (DALSØREN et al., 2007) comme cela s’est déjà produit dans les années 90 dans de larges régions du Nord de l’Europe et dans la région de Norilsk à l’Ouest de la Sibérie (FORSIUS et al., 2010). Ces aérosols de sulfate et nitrate pourraient aussi contribuer à l’échelle régionale à des chutes de pH du même ordre de grandeur que celles causées par les modifications des concentrations de CO_2 dans les régions présentant un trafic maritime dense (HASSELLÖV et al.,

2013). Le dépôt d’ozone sur les forêts et la toundra peut aussi avoir des effets importants sur ces écosystèmes continentaux. En examinant différentes routes de diversion pour les scénarios futurs de trafic maritime, nous avons aussi montré la nécessité de mieux évaluer ces derniers afin de fournir des prédictions plus réalistes des futures voies de navigation.

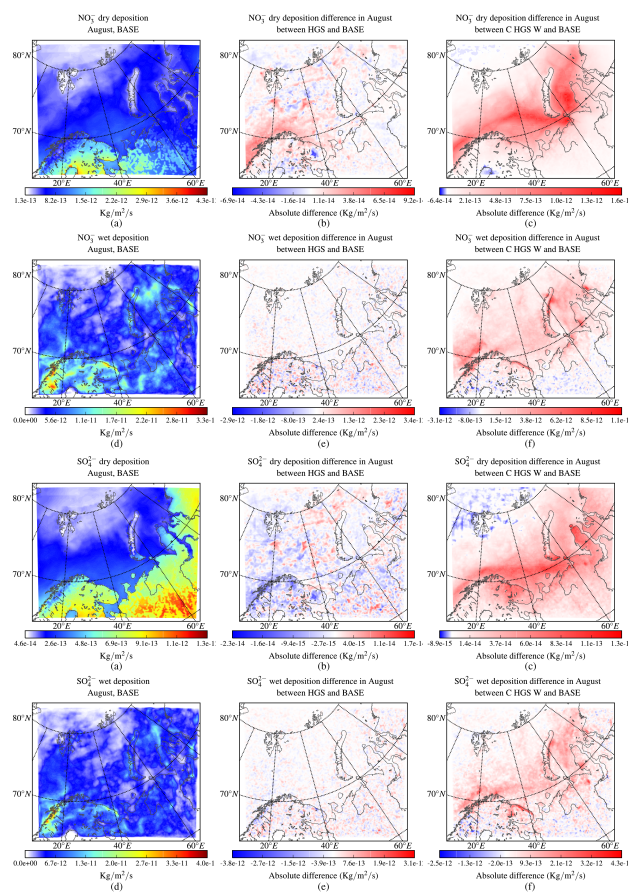


FIGURE 4.9 Moyennes mensuelles (en août 2012) des dépôts secs et humides de NO_3^- et de SO_4^{2-} et différences absolues entre simulations présente et futures des scénarios HGS et HGS avec diversion. Source : DASKALAKIS et al. (2020).

4.2 Extraction de ressources pétrolières et gazières

En raison de la réduction significative de la banquise arctique, la région s’ouvre à de nouvelles activités humaines, dont le trafic maritime de transit et l’extraction de ressources. Plus spécifiquement, on estime que la région arctique contient 30% et 13% des réserves inexploitées mondiales de gaz et de pétrole, respectivement (GAUTIER et al., 2009). Les installations de gaz et de pétrole émettent un cocktail de gaz (NO , SO_2 , COV , CH_4) et d’aérosols dont le BC (G. P. PETERS et al., 2011; KARION et al., 2013; STOHL et al., 2013; PÉTRON et al., 2014). Pendant le processus d’extraction, les émissions se produisent au cours de la production d’énergie, en utilisant le gaz naturel et le diesel comme combustibles, et pendant les activités de dégazage et de torchage (JAFTE et al., 1995; G. P. PETERS et al., 2011; STOHL et al., 2013). STOHL et al. (2013) ont récemment démontré que les écarts dans les inventaires d’émissions, et principalement l’absence d’émissions des torchères (venant de l’extraction de pétrole et les processus de production en Russie) sont en partie responsables de la représentation incorrecte du BC en Arctique. Ces incertitudes soulignent le besoin d’évaluer notre

connaissance actuelle des émissions d'extraction d'hydrocarbures en Arctique. Actuellement, les seules observations reportées dans la littérature sont basées sur les mesures de complexes d'extraction de pétrole sur la côte de Prudhoe Bay, en Alaska (JAFTE et al., 1995; S. B. BROOKS et al., 1997; BROCK et al., 2011).

4.2.1 Effet d'un complexe gazier isolé sur le contenu en aérosols dans la basse troposphère

Lors de la campagne PARCS en mai 2016 au voisinage d'Hammerfest, les mesures lidar aéroportées avaient mis en évidence une forte homogénéité de la CLA et un contenu faible en aérosols dans la basse troposphère (en dessous de 3 km) (CHAZETTE et al., 2018). Néanmoins, nous avons identifié les principales causes d'hétérogénéité : la production d'aérosols d'origine marine, l'advection de masses d'air venant du Nord depuis des sites industriels en Russie (région de Mourmansk), et la contribution des émissions des torchères sur la plateforme gazière de Melkøya (section 2.5). Le complexe gazier de Melkøya est en effet l'installation côtière la plus septentrionale au monde, utilise les technologies les plus récentes de traitement du LNG (gaz naturel liquéfié), et a potentiellement deux torchères actives qui peuvent influencer de manière significative les concentrations en aérosols : une torchère à haute pression pour le fonctionnement et le traitement chimique, et une torchère à basse pression pour le chargement et le stockage du LNG. Dans CHAZETTE et al. (2018), nous avons cherché à quantifier l'influence de ce complexe sur le contenu en aérosols dans la troposphère.

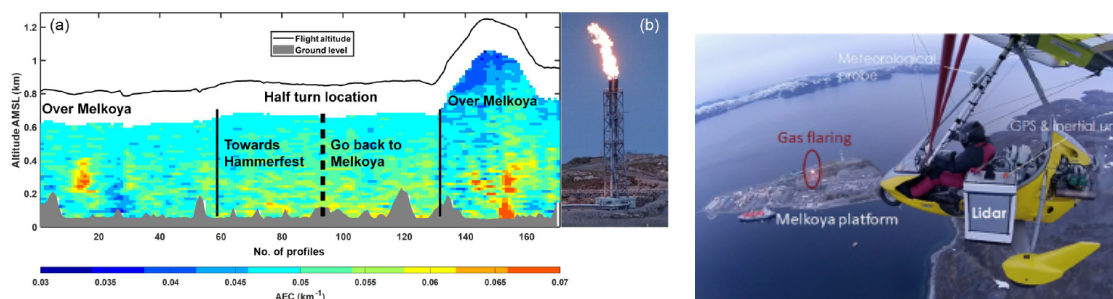


FIGURE 4.10 Profil vertical du coefficient d'extinction de l'aérosol à 355 nm (a) mesuré par le lidar Raman-N₂ LAASURS embarqué à bord d'un ULM au cours d'un vol le 16 mai 2016, dédié à l'échantillonnage des panaches de la torchère active de la plateforme de Melkøya (b). Source : CHAZETTE et al. (2018).

La cheminée la plus basse (~ 46 m) du complexe de Melkøya utilisée par la torchère à basse pression était active de manière régulière pendant la campagne expérimentale, et plus spécialement le 16 mai 2016, ce qui a motivé un vol d'ULM (Figure 4.10). Au moment de l'échantillonnage, le panache visible de la torche s'élevait à environ 20 m au-dessus de la cheminée et avait une largeur de 5 m. La fumée qui s'en échappait présentait une couleur noirâtre car des hydrocarbures lourds (condensats) étaient présents dans le gaz de la torchère. Le lidar embarqué sur l'ULM a détecté le panache à deux reprises lors du vol du 16 mai (Figure 4.10). Sa présence est caractérisée par les valeurs les plus fortes du coefficient d'extinction de l'aérosol (0.07 km^{-1} , en supposant un rapport lidar de 27 sr) détectées dans la CLA pendant toute la campagne PARCS. La contribution des émissions de cette torchère sur l'épaisseur optique a été évaluée à ~ 0.02 à 355 nm, représentant la moitié de l'épaisseur optique totale dans le premier km au-dessus de la surface (~ 0.04). Celle-ci peut augmenter avec le vieillissement de l'aérosol lors de la dilution du panache, notamment si les particules formées à l'échappement présentent un fort degré d'hygroscopicité.

Notons néanmoins que, considéré individuellement, l'effet de cette torchère active à basse pression ne représente qu'une petite contribution à la pollution régionale et reste très localisée. Comme ce site industriel est plutôt isolé, une généralisation de ces conclusions à des installations pétrolières ou gazières plus grandes serait très délicate et spéculative. C'est l'objet de l'étude publiée dans TUCCELLA et al. (2017) sur une campagne aéroportée à plus grande échelle où les panaches de nombreuses plateformes pétrolières et gazières ont pu être échantillonnées.

4.2.2 Quantification des émissions liées à l'extraction d'hydrocarbures et de leurs impacts

Dans TUCCELLA et al. (2017), nous avons examiné en détail les émissions associées à l'extraction d'hydrocarbures en mer de Norvège et leur impact sur la composition atmosphérique en combinant les mesures de la campagne aéroportée ACCESS en juillet 2012 et le modèle WRF-Chem à haute résolution (7 et 2 km). Ces émissions sont en effet hautement incertaines et représentent une source significative d'incertitudes pour estimer les impacts de la pollution locale actuelle et future dans les régions arctique et subarctique. La campagne a permis d'échantillonner des panaches de pollution de diverses installations, parmi lesquelles des plateformes de production, des citernes de stockage et des appareils de forage. Les simulations numériques avec WRF-Chem ont utilisé les émissions ponctuelles disponibles provenant de deux inventaires : TNO-MACC et les émissions reportées par la NEA (Norwegian Environmental Agency). Les émissions de NO_x incluses dans TNO-MACC sont beaucoup plus faibles que les émissions norvégiennes, d'un facteur 20 à 30, alors que les émissions de NMVOC de TNO-MACC sont 1.5 à 2 fois plus fortes que les données norvégiennes NEA. Il est important de noter que ces deux inventaires ne comprennent pas les émissions d'aérosols. Les émissions de PM, BC, OC primaires pour NEA ont été estimées à partir de facteurs d'émissions reportés par G. P. PETERS et al. (2011) pour l'Arctique norvégien.

Les simulations utilisant les émissions TNO-MACC ne reproduisent pas les concentrations de NO_x et d' O_3 observées, avec des NO_x 10 à 100 fois plus faibles que les observations et l' O_3 des panaches surestimée de 5 ppbv. En utilisant les émissions NEA, WRF-Chem est à même de simuler globalement la distribution des panaches de NO_x , d' O_3 et des concentrations particulières en nombre à toutes les altitudes, mais a tendance à disperser et diluer les pics sur plusieurs mailles du modèle, ce qui conduit à une sous-estimation des concentrations dans certains panaches (Figure 4.11). Ces différences peuvent être attribuées à la résolution horizontale du modèle et aux incertitudes relatives aux vents simulés. Les concentrations moyennes de NO_x et d' O_3 modélisées dans les panaches sont reproduites avec un coefficient de corrélation de 0.70 et 0.45, respectivement. Le biais sur la concentration d' O_3 prédite est sensible aux différences dans les niveaux relatifs des émissions de NO_x et de NMVOC, et dépend des modes opératoires des différentes installations, comme le torchage, qui peuvent être très intermittents. Les concentrations de NO_x et d'aérosols prédites sont surestimées dans les panaches en aval des installations dont les torchères n'étaient pas en fonctionnement, tandis que WRF-Chem reproduit mieux les augmentations en aval des installations qui reportent une activité normale (Figure 4.11). Les émissions sont représentatives de l'activité moyenne et ne prennent pas en compte les variations dans l'activation journalière des installations. L'impact des incertitudes dans les émissions sur les niveaux d' O_3 dans les panaches a été examiné en ayant recours à des tests de sensibilité, suggérant qu'au voisinage des plateformes l' O_3 est sensible aux émissions de NO_x plutôt qu'à celles de NMVOC.

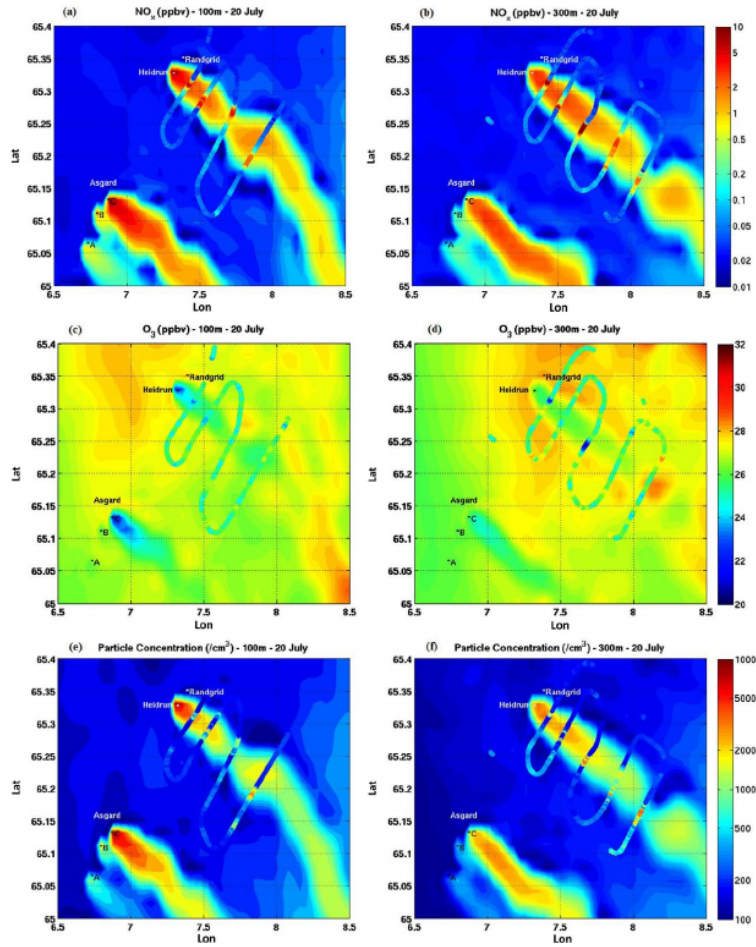


FIGURE 4.11 Comparaison entre les rapports de mélange de NO_x (a, b), d'O_3 (c, d) et les concentrations en nombre d'aérosols (e, f) observés et modélisés à 100 m (a, c, e) et 300 m (b, d, f) d'altitude le 20 juillet 2012 à 14 :00 UTC. Source : TUCCELLA et al. (2017).

En comparant les résultats des simulations avec et sans émissions NEA, nous avons trouvé que les rapports de mélange d'aérosols et d' O_3 sont augmentés jusqu'à 50 km sous le vent des plateformes avec des augmentations journalières moyennes en O_3 allant jusqu'à $+5 - 7\%$ ($+2$ ppbv) localement à la surface, et des augmentations plus grandes à midi allant jusqu'à 4 ppbv à 600 m d'altitude (Figure 4.12). Cela représente une augmentation régionale d' O_3 significative de 25 – 30 ppbv au-dessus des concentrations de fond. Ces augmentations résultent de la transition d'un régime de destruction photochimique nette près des plateformes à un régime de production photochimique nette, accompagnée du mélange vertical d' O_3 en aval (Figure 4.12). En termes d'aérosols, les changements les plus notables concernant le BC qui progresse de 2.2 ng m^{-3} ($+48\%$) à la surface et de $1.8 \mu\text{g m}^{-2}$ ($+35\%$) dans la colonne en réponse aux émissions d'extraction de pétrole et de gaz (Figure 4.13). Les $\text{PM}_{2.5}$ primaires, dont les SO_4^{2-} représentent la contribution la plus importante, augmentent de 7.8 ng m^{-3} (11%) à la surface, et $5.9 \mu\text{g m}^{-2}$ (7%) dans la colonne.

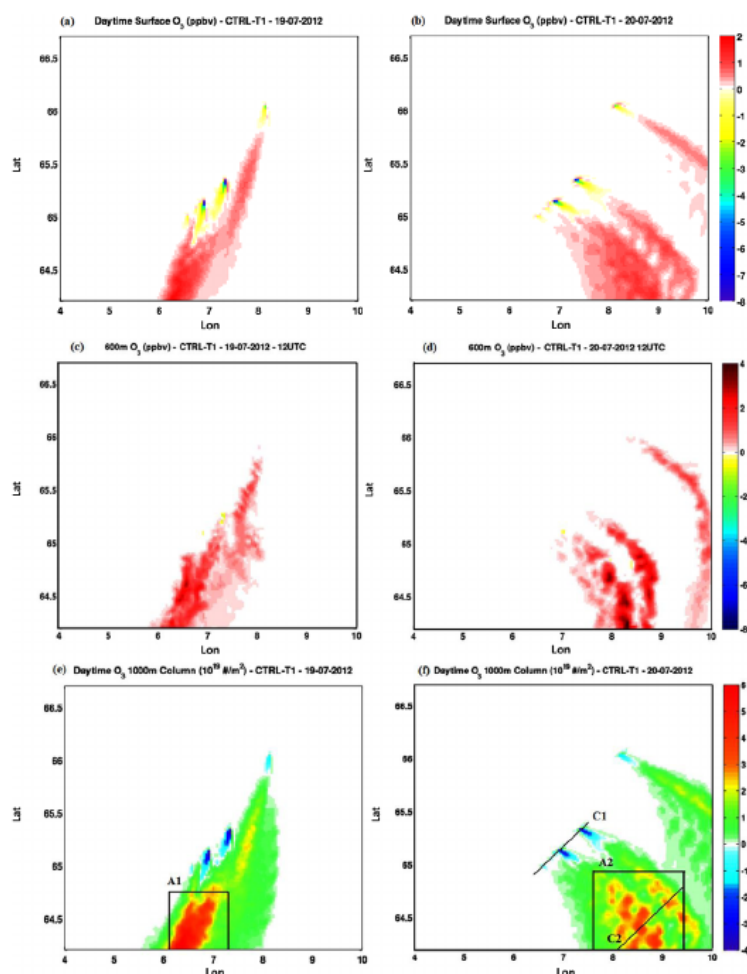


FIGURE 4.12 Différences des moyennes journalières (19 et 20 juillet 2012) des rapports de mélange d'O₃ à la surface (a, b), à 600 m (c, d) et intégrés dans le premier km (e, f) entre simulations avec et sans émissions liées à l'extraction de pétrole et de gaz. Source : TUCCELLA et al. (2017).

4.3 Conclusions du chapitre

Les mesures effectuées pendant les campagnes aéroportées ACCESS et PARCS ont permis les premières observations d'émissions issues des bateaux et des installations pétrolières et gazières au large en Arctique et ont fourni des informations précieuses sur la composition et la transformation chimique des émissions issues des activités industrielles émergentes et en augmentation en Arctique. Nos résultats de modélisation ont souligné des incertitudes significatives dans les émissions associées aux activités d'extraction d'hydrocarbures en Arctique et indiqué la nécessité de les améliorer, y compris leur variabilité temporelle et leur localisation spatiale. De plus, l'impact des émissions de pétrole et de gaz calculé dans nos travaux est probablement sous-estimé car les émissions des plateformes mobiles comme les citernes de stockage et les appareils de forage ne sont pas prises en compte dans les inventaires actuels. Dans le même temps, il est nécessaire d'inclure des émissions du trafic maritime plus détaillées. Une autre source d'incertitude majeure est associée au fait que les émissions d'aérosols issues de l'extraction de pétrole et de gaz ne soient pas incluses dans les inventaires existants. Nos études montrent aussi que les émissions locales des bateaux le long des côtes norvégiennes et liées à l'extraction d'hydrocarbures au large ont dors et déjà une influence significative sur la qualité de l'air et les effets radiatifs SW de l'aérosol. Comme le trafic

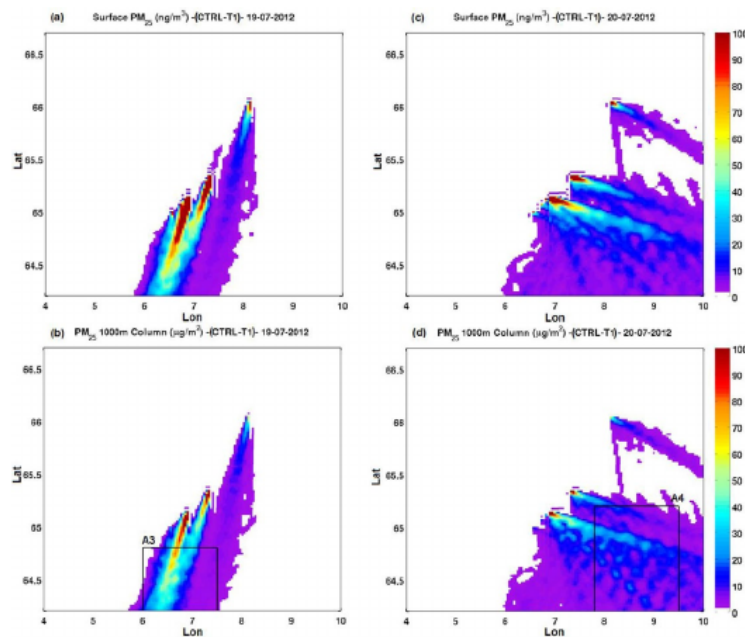


FIGURE 4.13 Différences des moyennes journalières (19 et 20 juillet 2012) des concentrations massiques de $PM_{2.5}$ à la surface (a, c) et intégrées dans le premier km (b, d) entre simulations avec et sans émissions liées à l'extraction de pétrole et de gaz. Source : TUCCELLA et al. (2017).

maritime en Arctique continue de croître et que de nouvelles réglementations sont mises en place, on s'attend à ce que l'ampleur de ces impacts change. Gardons à l'esprit qu'il ne s'agit que du point de départ d'une démarche visant à caractériser et à comprendre les émissions industrielles en augmentation en Arctique.

Étant données la zone limitée de nos domaines d'étude (Nord de la Norvège) et les courtes périodes (1 mois en été) considérées ici, il n'est pas possible de déduire l'effet radiatif d'autres polluants associés à la navigation au Nord de la Norvège, comme l'ozone, dont l'effet a été jugé significatif par des études de modélisation à l'échelle globale (DALSGØREN et al., 2013; ØDEMARK et al., 2012). Cependant, puisque les émissions du trafic maritime et de l'extraction de ressources sont fortement variables et locales, quantifier leurs impacts en utilisant des modèles globaux est un défi. Les impacts peuvent aussi être plus larges à d'autres périodes de l'année, en particulier en hiver et au printemps quand la CLA est moins développée et que d'autres processus chimiques peuvent avoir lieu avec moins d'ensoleillement ou des températures plus basses. Notre approche consiste à exploiter un CTM régional (WRF-Chem), à différentes échelles temporelles (plusieurs mois) et spatiales, accompagné d'émissions de bateaux et d'extraction d'hydrocarbures à haute résolution, pour évaluer les résultats du modèle par rapport aux observations et estimer l'impact régional de ces émissions. C'est l'un des objectifs détaillés dans le chapitre 5 (MARELLE et al., 2018).

Évaluation des effets radiatifs des aérosols et de l'ozone issus des sources locales et du transport à longue distance en Arctique

Cette section s'appuie sur les travaux publiés dans MARELLE et al. (2017), MARELLE et al. (2018), MARELLE et al. (2015), MARELLE et al. (2016) et AMAP (2015).

L'impact des émissions locales ou issues du transport à longue distance sur la composition de la troposphère arctique n'est pas seulement limité à l'augmentation des niveaux de pollution de l'air, mais concerne aussi le climat (DALSØREN et al., 2013; ØDEMARK et al., 2012). Une question ouverte est de savoir à quel point les polluants à courte durée de vie, particulièrement l'O₃ et les aérosols contenant du BC, contribuent au changement climatique dans cette région unique, caractérisée par un fort albédo de surface, de longues périodes d'ensoleillement (d'obscurité) en été (hiver) et une dynamique de couche limite polaire. Nous avons cherché, par des travaux de modélisation, à évaluer la sensibilité de la réponse radiative de l'atmosphère arctique à une modification des données d'émissions issues des sources anthropiques locales ou situées à grande distance. Les effets radiatifs des aérosols sont examinés avec ceux de l'ozone de manière à pouvoir comparer les impacts respectifs des différentes sources d'émissions.

À l'exception des émissions, les principales sources d'erreur dans les modèles en Arctique peuvent être examinées en utilisant des modèles régionaux, dans lesquels la couverture globale peut être sacrifiée au profit d'une complexité des processus physiques ou chimiques accrue et une meilleure résolution (seulement de $2^\circ \times 2^\circ$ ou plus grossière dans les modèles globaux (ECKHARDT et al., 2015; L. EMMONS et al., 2015)). Nous avons présenté dans les chapitres qui précèdent des cas d'études récents montrant la validité de cette approche pour comprendre l'effet des émissions locales des polluants issus du trafic maritime (MARELLE et al., 2016; DASKALAKIS et al., 2020) ou de l'extraction de pétrole et de gaz (TUCCELLA et al., 2017) aux hautes latitudes et les mécanismes de transport de pollution depuis les moyennes latitudes vers l'Arctique (THOMAS et al., 2013; MARELLE et al., 2015; RAUT et al., 2017). Cependant, ces cas d'études étaient basés sur des simulations courtes, relativement locales, alors que les effets radiatifs de la pollution, en partie transportée en Arctique depuis les moyennes latitudes, ne pourront vraiment être étudiés qu'à partir de simulations longues à des échelles quasi-hémisphériques.

5.1 Améliorations du modèle pour les simulations hémisphériques

Nous avons déjà effectué, pour la première fois avec WRF-Chem, des simulations quasi-hémisphériques sur plusieurs mois et celles-ci avaient été évaluées dans ECKHARDT et al. (2015) et AMAP (2015) (chapitre 3). Malheureusement, en dépit d'une bonne performance pour des cas d'étude locaux, le modèle WRF-Chem a révélé une piètre performance en termes d'aérosols (ECKHARDT et al., 2015), ne parvenant pas à représenter les concentrations observées et leur évolution saisonnière au printemps et à l'été 2008. AMAP (2015) a montré que le modèle se comportait relativement bien pour l'ozone, mais d'autres études (AHMADOV et al., 2015) ont indiqué que la version de WRF-Chem utilisée dans AMAP (2015) pouvait être fortement biaisée (négativement) pour l'ozone au-dessus d'un sol couvert de neige en raison d'une surestimation du dépôt sec et une sous-estimation des taux de photolyse. Dans ce contexte, nous avons cherché dans MARELLE et al. (2017) à améliorer les résultats du modèle pour la représentation des aérosols et l'ozone en Arctique par rapport aux intercomparaisons à grande échelle précédentes (ECKHARDT et al., 2015; AMAP, 2015). Cela a également permis d'identifier des axes potentiels pour des développements futurs de WRF-Chem, et de définir une configuration utilisée ensuite (section 5.2) pour étudier les impacts radiatifs de la pollution en aérosols et ozone à des échelles continentales en Arctique.

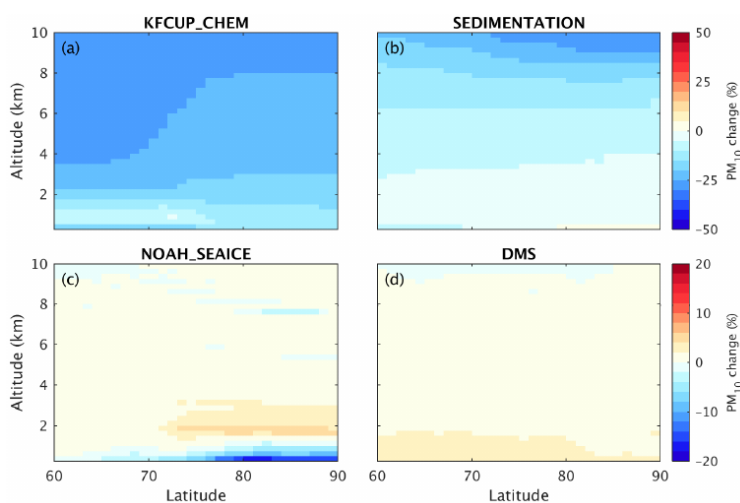


FIGURE 5.1 Changements moyens entre avril et juillet 2008 de la moyenne zonale des PM_{10} dus (a) à l'effet des cumulus dans KF-CuP sur les aérosols et les gaz traces, (b) à la sédimentation des aérosols en altitude, (c) au puits de chaleur lors de la fusion de la glace de mer dans Noah et (d) aux émissions et à la chimie du DMS. Source : MARELLE et al. (2017).

Dans MARELLE et al. (2017), le modèle WRF-Chem a ainsi été mis à jour pour améliorer les simulations des polluants à courte durée de vie, comme les aérosols et l'ozone en Arctique (définie ici comme la région au Nord de $60^{\circ}N$). Les modifications ont été apportées dans la version 3.5.1 de WRF-Chem, utilisant le mécanisme chimique en phase gazeuse SAPRC-99 (CARTER, 2000) et le mécanisme d'aérosols MOSAIC-VBS2 (ZAVERI et al., 2008), incluant la formation d'aérosols organiques secondaires (SHRIVASTAVA et al., 2011), une chimie en phase aqueuse dans les nuages résolus (MORRISON et al., 2009) et à l'échelle sous-maille (BERG et al., 2015). Plus spécifiquement, nous avons inclus :

1. un schéma de sédimentation des aérosols, explicite, du premier ordre, au-dessus du premier niveau vertical dans MOSAIC ;

2. une représentation simplifiée de la production chimique de SO_2 à partir des émissions océaniques de diméthylsulfure (DMS) dans SAPRC-99, d'après les travaux de L. EMMONS et al. (2010) et CHIN et al. (1996) ;
3. une meilleure représentation de la diminution de la vitesse du dépôt sec des gaz traces au-dessus de la neige saisonnière, lorsque son épaisseur dépasse 10 cm, comme pour les surfaces recouvertes de neige en permanence ;
4. une dépendance de l'albédo UV à la couverture de neige et de glace, pour les calculs de photolyse, en fonction du type de surface (TANSKANEN et MANNINEN, 2007) ;
5. une prise en compte de la perte de chaleur liée à la fonte de la glace de mer (chaleur latente de fusion de la glace) dans les bilans d'énergie à la surface, dans le modèle de terrain Noah ;
6. un couplage et des tests supplémentaires de la paramétrisation récente des cumulus KF-CuP (Kain-Fritsch + Cumulus Potential) incluant l'effet des cumulus sur les aérosols et les gaz traces (BERG et al., 2015).

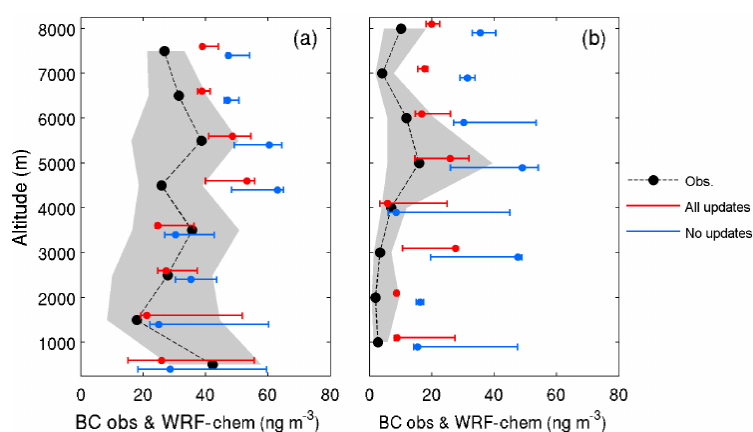


FIGURE 5.2 Profils médians de BC mesurés pendant ARCTAS (noir) au printemps (a) et en été (b) au-delà de 70°N et simulés par le modèle avec (rouge) et sans (bleu) modifications. Les barres d'erreur représentent l'étendue interquartile. Source : MARELLE et al. (2017).

La mise à jour du modèle a largement réduit les erreurs du modèle et considérablement amélioré le cycle saisonnier des aérosols en surface (Figure 5.3) par rapport aux évaluations de WRF-Chem antérieures en Arctique (ECKHARDT et al., 2015). Des simulations spécifiques à l'échelle quasi-hémisphérique, avec et sans chacune des modifications, nous ont permis de comprendre l'effet des processus, pris individuellement, sur les distributions de polluants en Arctique (Figure 5.1). Les concentrations de BC simulées en Arctique dans la colonne troposphérique et à la surface sont particulièrement sensibles à l'effet des cumulus sur les aérosols et les gaz traces (dépôt humide, activation des aérosols en gouttelettes nuageuses, resuspension des aérosols, transport vertical et chimie dans les nuages, représentés par le schéma KF-CuP) (Figure 5.2 et Figure 5.3) et à la représentation de la température de peau au-dessus de la glace de mer dans le modèle de couche de surface Noah (Figure 5.1). Ce dernier processus a une influence capitale car le contraste de température entre les zones recouvertes de neige et de glace de mer et celles qui en sont dépourvues sont un des facteurs principaux contrôlant la localisation du dôme arctique (STOHL, 2006; KLONECKI et al., 2003), dont la récession en été isole la surface arctique de la pollution transportée depuis les moyennes latitudes. Implémenter ces deux processus (couplage KF-CuP et température dans

Noah), ainsi que la chimie en phase gazeuse du DMS, améliore également la représentation des concentrations de sulfate en Arctique (Figure 5.3). En dehors des routes de navigation en Arctique, les émissions et la chimie en phase gazeuse du DMS sont responsables de 90 à 100% du SO_2 en surface dans la région, principal précurseur des aérosols de sulfate. Dans nos simulations, négliger la sédimentation en altitude n'a pas un effet significatif sur les concentrations de BC et de sulfate et n'a qu'une faible influence sur les concentrations totales d'aérosols, sauf dans la haute troposphère (Figure 5.1).

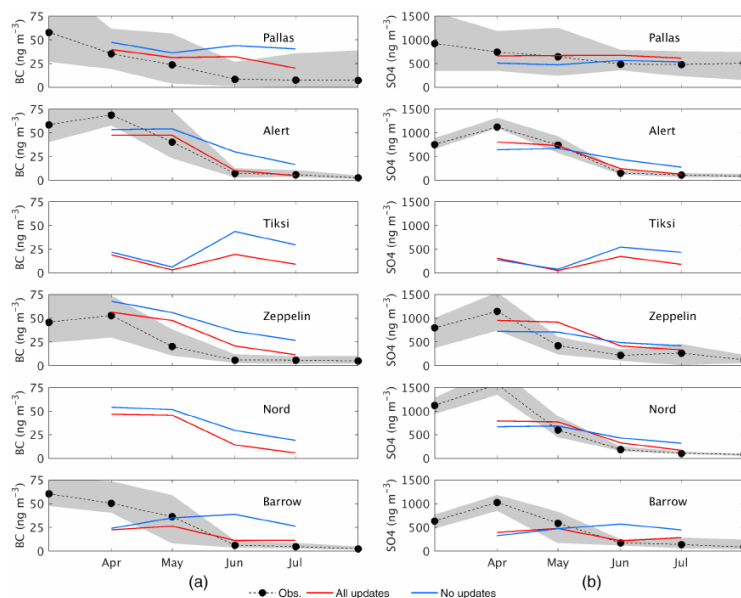


FIGURE 5.3 Médiannes mensuelles de BC et SO_4^{2-} observées aux stations arctiques (noir) et simulées par WRF-Chem, avec (rouge) et sans (bleu) modifications. Source : MARELLE et al. (2017).

Les mises à jour du modèle ont également amélioré les concentrations d'ozone simulées, à la fois en Arctique et aux moyennes latitudes. Les corrections apportées à la température de peau dans le modèle de terrain Noah ont une influence importante sur l'ozone au-dessus de la glace de mer (-5 à -10 ppbv), tandis que l'implémentation de KF-CuP augmente l'ozone de $+2$ à $+5$ ppbv à la fois en Arctique et aux moyennes latitudes (Figure 5.4). Les sources principales d'amélioration au-dessus des continents s'avèrent être l'implémentation de la dépendance de l'albédo dans l'UV à la couverture de neige et de glace dans le schéma de photolyse Fast-J, et la diminution des vitesses de dépôt au-dessus des sols recouverts de neige (Figure 5.4). Les taux de photolyse prédits par Fast-J sont considérablement augmentés au-dessus des régions couvertes de neige et de glace en avril, de 50 à 200% pour $j\text{O}^1\text{D}$ et $j\text{NO}_2$. L'effet combiné de ces deux processus est supérieur à $+10$ ppbv au printemps lorsque la neige saisonnière est présente, en Arctique et aux moyennes latitudes. Toutefois, implémenter ces processus peut parfois dégrader la performance du modèle en Arctique au printemps, notamment sur les sites côtiers (par exemple Barrow, Alert, Station Nord) en augmentant les niveaux d'ozone, déjà surestimés à cause de l'absence de chimie des halogènes dans le mécanisme de phase gazeuse (AMAP, 2015).

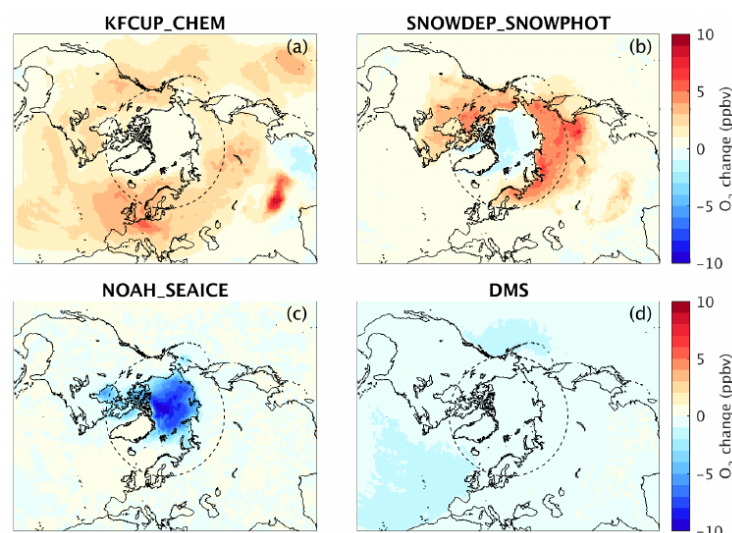


FIGURE 5.4 Changements moyens d’ozone de surface entre avril et juillet 2008 dus (a) à l’effet des cumulus dans KF-CuP sur les aérosols et les gaz traces, (b) à une meilleure représentation du dépôt sec des gaz traces au-dessus de la neige et à l’albédo UV pour la photolyse au-dessus de la neige et la glace, (c) au puits de chaleur lors de la fusion de la glace de mer dans Noah et (d) aux émissions et à la chimie du DMS. Source : MARELLE et al. (2017).

5.2 Contributions des sources distantes ou locales et effets radiatifs associés

Dans MARELLE et al. (2015) (chapitre 2), nous avons utilisé WRF-Chem pour estimer les effets radiatifs directs et semi-directs au sommet de l’atmosphère (TOA) des aérosols transportés depuis l’Europe vers l’Arctique. Notre évaluation pour un événement de transport (3.3 W m^{-2}) à midi solaire et au-dessus des surfaces continentales recouvertes de neige et de glace était comparable aux études antérieures de l’effet direct des aérosols au printemps dans l’Arctique américain (3.3 W m^{-2} et 2.5 W m^{-2} respectivement par BROCK et al. (2011) et QUINN et al. (2007)). Étant donné que les champs de température, de vent et d’humidité avaient été guidés (« nudging ») dans notre étude par des champs météorologiques à grande échelle (FNL), il est probable que l’effet semi-direct de l’aérosol ait été amorti dans ces simulations, et les valeurs obtenues fussent davantage représentatives de l’effet direct seulement. La détermination des impacts radiatifs des polluants à courte durée de vie en Arctique nécessite plutôt des résultats de modèles fiables à une échelle quasi-hémisphérique. Par exemple, l’importance relative des différentes sources de polluants sur le bilan radiatif est toujours incertaine : locale ou à distance, combustion fossile ou de biomasse, origine naturelle ou anthropique. D’autre part, attribuer des tendances récentes dans la composition atmosphérique en Arctique peut s’avérer être une tâche délicate si le transport à longue distance depuis les diverses régions sources n’est pas reproduit convenablement. La configuration du modèle présentée dans MARELLE et al. (2017) améliore sensiblement la simulation du BC, du sulfate et de l’ozone à l’échelle de l’Arctique, désormais en meilleur accord avec les observations que la plupart des modèles globaux inclus dans ECKHARDT et al. (2015) et AMAP (2015).

Notre étude (MARELLE et al., 2018), basée sur des tests de sensibilité avec WRF-Chem, a examiné les impacts actuels (2012) et futurs (2050) des émissions distantes (sources anthropiques aux moyennes latitudes et feux de biomasse) et des émissions locales émergentes (navigation et torchères de gaz en Arctique) sur les distributions (à la surface et dans la troposphère), les flux de dépôt et les effets radiatifs des aérosols et de l’ozone en Arctique, au printemps et en été. L’im-

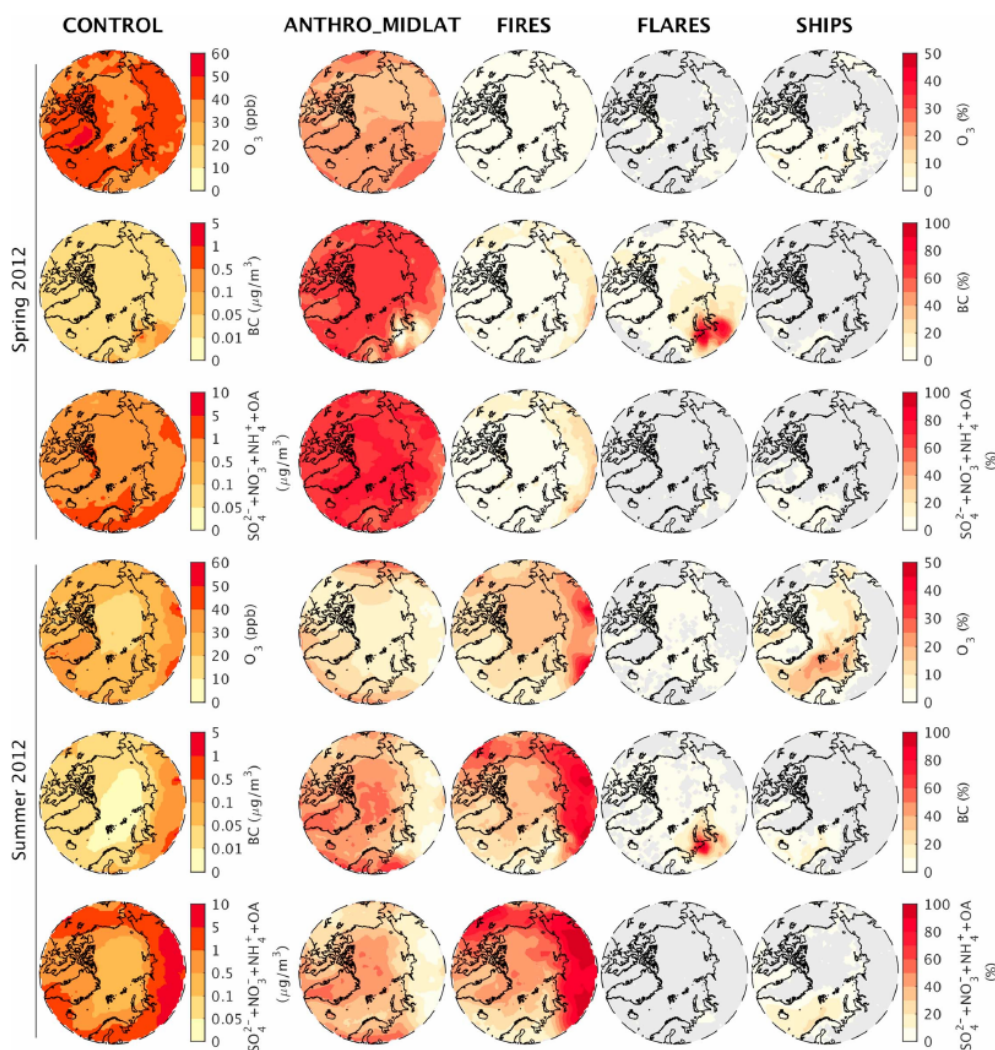


FIGURE 5.5 Concentrations moyennes d'O₃ et d'aérosols (BC et SO₄²⁻ + NO₃⁻ + NH₄⁺ + OA) à la surface en Arctique au printemps et à l'été 2012 et contributions relatives des différentes sources d'émissions individuelles : émissions anthropiques aux moyennes latitudes, feux de biomasse, torchères de gaz en Arctique et bateaux en Arctique. Les valeurs non significatives sont représentées en gris. Source : MARELLE et al. (2018).

portance de cette question avait été soulignée dans des articles récents (S. ARNOLD et al., 2016; LAW et al., 2017), mais cette comparaison (sources locales vs sources à longue distance) n'avait jusqu'à présent jamais été effectuée. Nous avons considéré l'effet du changement des émissions futures, et non l'effet du changement du climat arctique, qui inclurait les modifications de la banquise, pouvant également influencer les niveaux futurs d'aérosols et d'ozone en Arctique et leurs impacts. Les projections futures utilisant un scénario prenant en compte la législation des réductions d'émissions actuellement planifiées (ECLIPSEv5-CLE) prédisent en 2050 de plus faibles émissions de BC et de plus fortes émissions de SO₂ et de NO_x par rapport aux niveaux de 2012 dans l'hémisphère Nord, avec des émissions de torchères en Arctique augmentant doucement. Nous avons également utilisé des scénarios à forte croissance des émissions futures des bateaux en Arctique, prenant en compte la diversion future de la navigation à travers l'océan Arctique. Nos résultats font l'hypothèse d'émissions de feux de biomasse identiques à celles de 2012.

En accord avec les études précédentes sur la pollution en Arctique, nous avons trouvé que le transport à longue distance de pollution issue des émissions anthropiques aux moyennes latitudes

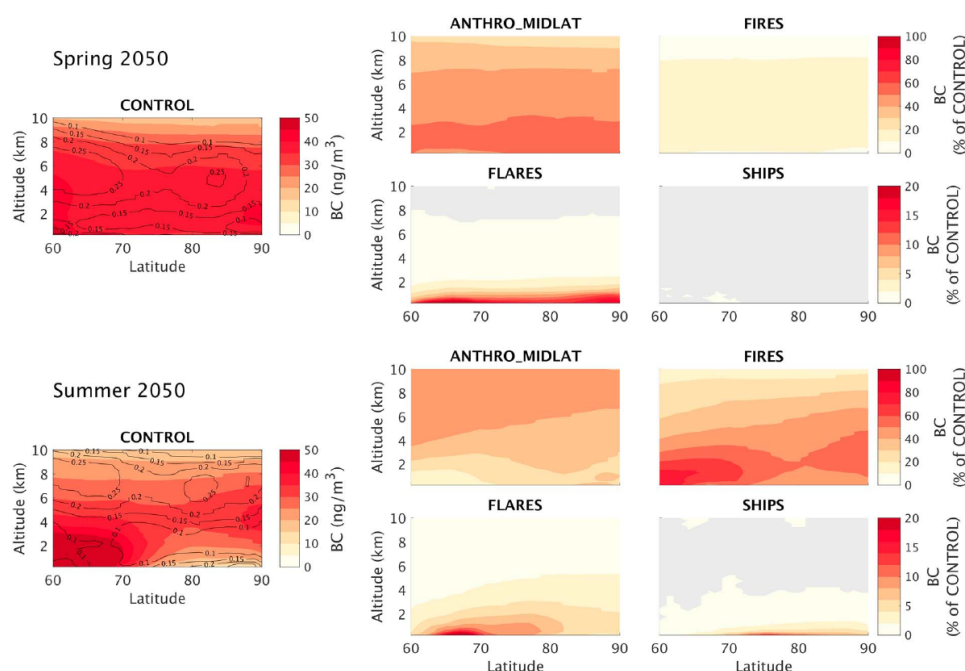


FIGURE 5.6 Moyennes zonales des concentrations de BC au printemps et à l'été 2050, et contributions relatives de chaque source. Les contours noirs sur la simulation de référence (CONTROL) montrent la fraction nuageuse saisonnière moyenne. Les valeurs non significatives sont représentées en gris. Source : MARELLE et al. (2018).

et des feux de biomasse demeurerait incontestablement la principale source contribuant aux niveaux de pollution en Arctique (pour 2012 et 2050), la pollution d'origine anthropique dominant au printemps et les feux de biomasse l'emportant pendant l'été (Figure 5.5). Nous avons néanmoins mis en évidence que les sources locales jouaient déjà un rôle significatif sur les concentrations d'O₃ et d'aérosols (BC, NO₃⁻, NH₄⁺, SO₄²⁻) à la surface et dans la basse troposphère. Le trafic maritime actuel en Arctique représente une contribution importante à l'ozone en surface (15 à 25% du total en surface) dans la région des mers de Norvège et de Barents pendant l'été (Figure 5.5). Cela provient de la forte augmentation en été des concentrations d'OH en surface (d'un facteur 2 environ en mer de Norvège) à cause des émissions de NO_x des bateaux (Figure 5.5). Le trafic maritime contribue de plus à hauteur de 10 à 30% aux concentrations d'aérosols dans les mers nordiques. Nous avons estimé que le torchage de gaz en Arctique était actuellement une source majeure de BC à la surface au printemps et en été, et de dépôt de BC sur les surfaces de neige et de glace au printemps au Nord de la Russie et en mer de Kara (Figure 5.5). Nous avons montré que ces contributions significatives pourraient se poursuivre à l'avenir et que l'influence relative sur le BC des torchères locales en Arctique pourrait augmenter car une réduction des émissions anthropiques de BC aux moyennes latitudes est envisagée (Figure 5.6). Contrairement aux études précédentes, nous n'avons pas trouvé que les torchères de gaz étaient une source significative de BC en dehors de l'Europe du Nord, du Nord de la Russie et de la mer de Kara (Figure 5.5). À cause de la croissance prédite des émissions des bateaux en Arctique liée à la diversion du trafic maritime en 2050, la navigation en Arctique pourrait devenir une source majeure d'ozone en surface (jusqu'à +10 ppbv) (Figure 5.7) et d'aérosols (localement la plus grande source de BC en surface) pendant l'été arctique (Figure 5.6). La diversion du trafic maritime ne contribue pas de manière significative au dépôt de BC sur la neige et la glace à cause d'un lessivage humide efficace du BC au-dessus de

l'océan Arctique, ouvert à cette période de l'année. La contribution relative des émissions anthropiques distantes pourrait de plus être réduite par les contrôles d'émissions aux moyennes latitudes.

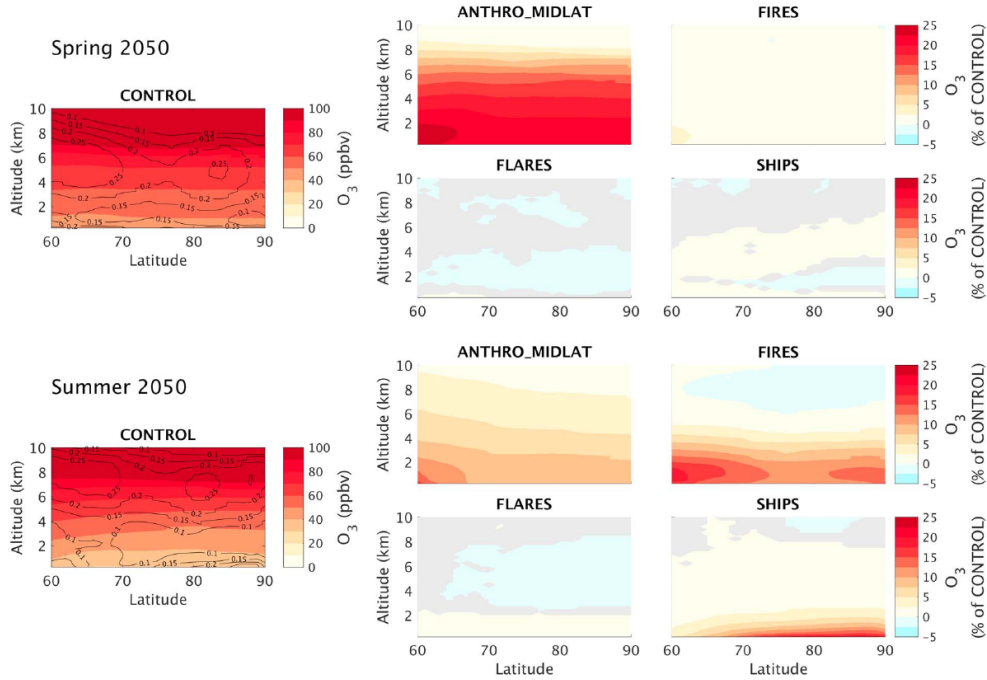


FIGURE 5.7 Moyennes zones des concentrations d'O₃ au printemps et à l'été 2050, et contributions relatives de chaque source. Les contours noirs sur la simulation de référence (CONTROL) montrent la fraction nuageuse saisonnière moyenne. Les valeurs non significatives sont représentées en gris. Noter que la somme des contributions individuelles est bien inférieure à 100% car la chimie de l'ozone est non-linéaire et parce que plusieurs sources importantes ne sont pas quantifiées (stratosphère, éclairs). Source : MARELLE et al. (2018).

Dans MARELLE et al. (2018), nous avons aussi estimé les effets indirects des aérosols issus des sources lointaines et locales en Arctique ($> 60^\circ\text{N}$), en utilisant un modèle résolvant explicitement l'activation des aérosols dans les nuages. Quantifier les effets radiatifs dus aux émissions locales en Arctique est rendu complexe par la variabilité interne du modèle, à cause de petites perturbations dans les distributions des concentrations et des rétroactions aérosols-nuages. Nous avons eu recours à des simulations d'ensemble pour tester la significativité statistique des effets radiatifs directs et indirects. Nos résultats ont montré qu'actuellement les aérosols de feux de biomasse et d'origine anthropique à distance présentaient des effets indirects et semi-directs combinés de -2.1 W m^{-2} au sommet de l'atmosphère (TOA) au printemps et -3.7 W m^{-2} en été. En comparaison, nous avons trouvé un effet direct combiné de $+0.9 \text{ W m}^{-2}$ au printemps (en raison du fort albédo de neige et de glace) et -3.1 W m^{-2} en été (Figure 5.8). Par contraste avec ces sources éloignées, nous avons estimé que les effets radiatifs actuels des bateaux et des torchères étaient faibles, environ 25 mW m^{-2} au maximum pour l'effet direct des aérosols issus du torchage en Arctique, à la fois au printemps et en été (Figure 5.8). Cette valeur semble être pilotée par l'effet du BC au-dessus de la banquise, et est comparable au forçage radiatif net d'environ 20 mW m^{-2} estimé par ØDEMARK et al. (2012) pour les émissions actuelles liées à l'extraction de pétrole et de gaz et principalement attribué au BC émis déposé sur la neige.

Contrairement aux études passées, nous avons mis en évidence un effet radiatif direct significatif, légèrement négatif, au TOA, causé par l'ozone produit par les bateaux en Arctique ($\sim -15 \text{ mW m}^{-2}$ en 2012 et -4 mW m^{-2} à l'été 2050) (Figure 5.8). Ce forçage négatif pour un gaz à effet de serre,

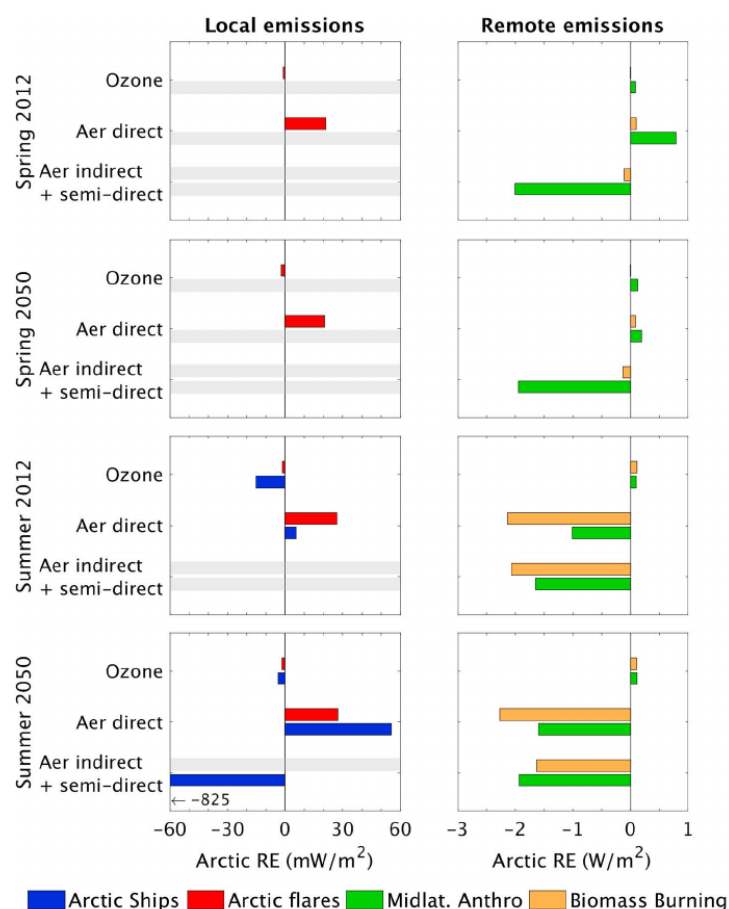


FIGURE 5.8 Effets radiatifs instantanés moyens en Arctique au TOA pour chaque source au printemps et à l'été des années 2012 et 2050. Les effets directs et indirects des aérosols sont calculés pour le rayonnement SW uniquement ; l'effet de l'ozone est calculé pour le rayonnement SW+LW. Les valeurs non représentatives sont représentées en gris. Source : MARELLE et al. (2018).

paradoxal à première vue, est en réalité dû aux fréquentes inversions thermiques en Arctique, et au fait que l'ozone produit dans les panaches de bateaux en Arctique est souvent localisée dans des couches atmosphériques plus chaudes que la surface. L'effet indirect de l'aérosol dû aux émissions locales actuelles en Arctique n'a pu être déterminé par notre méthode, car les valeurs étaient trop faibles pour être statistiquement significatives. Cependant, un résultat majeur de notre étude est que l'augmentation du contenu en aérosols (notamment SO_4^{2-} , NH_4^+ et NO_3^-), causée par le trafic maritime futur pourrait conduire à un effet indirect et semi-direct négatif très important (-0.8 W m^{-2}), comparable en valeur absolue aux effets directs et indirects des émissions anthropiques et de feux de biomasse (Figure 5.8). Dans nos simulations, cet effet important est engendré par la localisation des aérosols émis par les bateaux, souvent présents au sein de la couche nuageuse (Figure 5.6), notamment en été lorsque la diversion du trafic maritime intervient. Avec le développement des routes de diversion des bateaux à travers l'océan Arctique à l'été 2050, les émissions du trafic maritime en Arctique pourraient donc devenir la principale source d'aérosols et de pollution à l'ozone à la surface, avec de forts effets radiatifs indirects, tandis que le torchage resterait une source importante de BC.

5.3 Conclusions du chapitre

Nous avons proposé de nombreuses améliorations du modèle WRF-Chem pour la région arctique. Le modèle est désormais capable de représenter les aérosols et l'ozone observés en Arctique (MARELLE et al., 2017). En plus des distributions verticales de polluants, d'autres questions scientifiques liées à l'Arctique peuvent aussi largement bénéficier de telles simulations régionales à grande échelle précises, comme l'impact de la pollution de l'air sur les écosystèmes via le dépôt (DASKALAKIS et al., 2020) et une meilleure quantification des impacts climatiques des interactions aérosols-nuages en Arctique et du dépôt de BC sur la neige (S. ARNOLD et al., 2016). Nos résultats indiquent que, même si les émissions depuis les sources locales sont relativement faibles comparées aux totaux à l'échelle globale (GRANIER et al., 2011), elles ont des impacts significatifs en Arctique. Les émissions du trafic maritime en Arctique sont une des sources majeures d'OH et d'O₃ à la surface, et les torchères en Arctique sont une source majeure de concentrations de BC en surface et de dépôt de BC. Cette influence risque vraisemblablement de croître dans le futur, en particulier si la diversion du trafic se développe rapidement. Le cas échéant, le trafic maritime en Arctique pourrait devenir une source majeure d'aérosols et d'ozone à la surface en été et aurait potentiellement localement de très forts effets radiatifs au TOA à cause de l'effet indirect des aérosols. Cependant, même dans les scénarios d'émissions locales les plus pessimistes, les émissions anthropiques aux moyennes latitudes et de feux de biomasse resteraient les principales sources de contenus en aérosols et en ozone dans la troposphère arctique, et celles contribuant le plus aux effets radiatifs des aérosols et de l'ozone en Arctique. Afin de donner davantage de poids à nos résultats, une meilleure quantification des rétroactions aérosols-nuages et des processus influençant la distribution verticale et les puits de polluants est nécessaire, de même que de nouvelles méthodes permettant d'évaluer les effets radiatifs des polluants pour toute une gamme de scénarios possibles.

Perspectives

Les travaux résumés dans ce document permettent modestement d'améliorer notre compréhension des aérosols en Arctique. Il est toutefois important de garder à l'esprit que les résultats présentés ici sont basés sur des simulations relativement courtes (au maximum d'une année), et ne considèrent pas par exemple la variabilité interannuelle de l'activité des feux boréaux ou de la couverture de neige et de glace de mer, qui peuvent influencer les aérosols en Arctique. De plus, les résultats présentés dans le chapitre 5 indiquent que les effets radiatifs des aérosols modélisés sont relativement incertains, en raison de la nature chaotique des nuages et de la précipitation modélisés. Afin d'améliorer la robustesse de ces calculs, il est primordial de s'intéresser à ces effets chaotiques afin de distinguer proprement le signal du bruit dans les résultats modélisés. Cela peut être envisagé à l'avenir en réalisant des simulations d'ensemble et un filtrage statistique pour séparer signaux (forçages radiatifs) et bruit (variabilité interne du modèle), pour tester par exemple la sensibilité de la navigation ou de l'activité des torchères en Arctique, sur des domaines de simulations plus restreints et imbriqués (nesting) dans un domaine couvrant toute la région arctique. En raison de cette variabilité, l'effet radiatif des interactions aérosols/nuages (effets indirects) causé par les émissions locales en Arctique est encore moins bien quantifié que leurs effets directs. Il apparaît de plus dans nos travaux que les effets directs des aérosols (et de l'ozone) en Arctique dépendent fortement de la météorologie modélisée en Arctique (profils verticaux de température pour les effets LW, couverture nuageuse pour les effets SW). Afin de mieux contraindre ces effets radiatifs, il est nécessaire de mieux valider les représentations de la météorologie arctique dans les modèles, particulièrement les inversions thermiques prononcées au voisinage de la surface et les nuages en Arctique. Le rôle des interactions entre la CLA, les nuages et les aérosols est le thème que je souhaite développer dans les années à venir et dont les enjeux sont décrits maintenant.

Une meilleure compréhension du changement climatique en Arctique exige une approche quantitative du système couplé atmosphère-glace-océan, prenant en compte les interactions entre les moyennes et les hautes latitudes, par exemple l'apport de pollution vers la troposphère arctique. Quoique les modèles de climat couplés soient des outils parfaitement appropriés pour étudier les rétroactions climatiques, il subsiste encore de nombreuses limites dans notre connaissance des processus, principalement parce que les observations indispensables à l'échelle des processus ont été spatialement et temporellement rares pour des raisons logistiques et pratiques. Cela requiert de collecter puis d'analyser de nouvelles données et d'avoir recours à la modélisation régionale à haute résolution. Des études ont suggéré que les écarts entre les étendues de la banquise observées et simulées pourraient être attribuées, au moins en partie, à la faible représentation des nuages et des aérosols dans les modèles de climat (OVERLAND et M. WANG, 2013). Leur présence dans la troposphère pilote aussi fortement le bilan de chaleur à la surface, affectant ainsi l'évolution de la

CLA arctique (HINES et al., 2011). Les observations mettent en évidence un haut degré de stratification verticale à fine échelle, mal reproduit par les modèles globaux actuels et qui a pourtant un impact significatif sur les bilans radiatifs. Des simulations à haute résolution (1 – 20 km), évaluées à partir des observations, sont donc nécessaires pour améliorer la représentation des processus atmosphériques en Arctique, en prenant en compte la chimie atmosphérique et les aérosols.

L'utilisation du modèle Polar-WRF (HINES et BROMWICH, 2008 ; BROMWICH et al., 2009), version optimisée de WRF pour les régions polaires et développée par le Byrd Polar Research Center (Ohio), répond au besoin de disposer d'outils numériques précis visant à mieux comprendre et prédire les processus physiques à l'œuvre dans l'environnement arctique. L'albédo de surface par exemple dépend fortement du cycle saisonnier de gel/dégel de la banquise. L'objectif sera alors de mettre au point de nouvelles paramétrisations sur la CLA arctique, la physique et les phénomènes radiatifs dans les nuages, les propriétés de surface de la neige, le traitement de la glace de mer ou encore sur les interactions aérosols-nuages en Arctique.

6.1 Étude des processus-clés dans la couche limite nuageuse en Arctique

6.1.1 Contexte et objectifs

Les températures de surface ont augmenté en Arctique au moins deux fois plus vite qu'en moyenne globale sur les cinq dernières décennies. Associée à des facteurs comme la rétroaction via l'albédo de neige et de glace, cette augmentation tend à faire croître les flux de chaleur et la nébulosité. Le rayonnement, lié aux propriétés nuageuses, apparaît comme une composante fondamentale de la réduction de l'extension de la banquise en septembre, mais aussi du déclin de la glace pérenne et de l'amincissement global de la banquise à différentes échelles (STROEVE et al., 2012). Aussi, les conditions de forte stabilité thermique rencontrées dans le passé pourraient ne plus être aussi fréquentes. Les réanalyses et a fortiori les prévisions météorologiques issues des modèles sont incertaines en zone arctique, à cause de nombreux biais dans les produits de surface utilisés comme conditions initiales et aux limites (LINDSAY et al., 2014). Le transfert de chaleur entre la couche de glace et l'atmosphère est contrôlé par la présence de la couche de neige. Son albédo élevé et son isolation thermique importante sont des facteurs critiques régulant le bilan d'énergie et par conséquent la température de surface. En conditions stables, quand la température de surface est inférieure à la température de la couche d'air qui la surmonte, les modèles ont tendance à sous-estimer la production de turbulence à proximité de la surface. Ceci conduit alors à un couplage insuffisant entre la surface et les couches atmosphériques supérieures, limitant la formation nuageuse (HINES et BROMWICH, 2017) et faussant les bilans énergétiques à la surface (Figure 6.1).

La circulation océanique et le forçage du vent agissent pour former la morphologie de la glace de mer, via la formation de rides de pression, de fractures de glace, de mares de fonte ou de polynies. Les fractures peuvent jouer un rôle clé dans la perte de chaleur en surface (D. PEROVICH et al., 2011), la formation de nuages bas et la pénétration du rayonnement SW dans l'océan. Les crêtes de glace conduisent également à des changements de la rugosité de surface aux interfaces avec l'atmosphère et l'océan, de même que la formation des lacs de fonte. De telles caractéristiques tendent à créer des couches limites internes dans l'atmosphère et augmentent la turbulence en basses couches et la formation nuageuse. L'amincissement de la banquise et sa fracturation peuvent

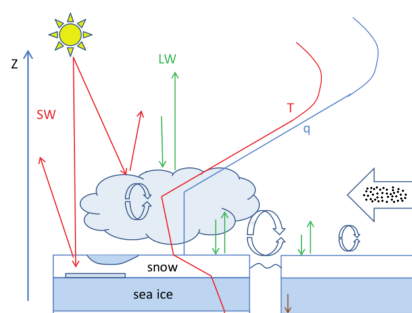


FIGURE 6.1 Représentation simplifiée des processus physiques et des profils verticaux de température (T) et d'humidité (q) dans le système climatique en Arctique. Les processus d'intérêt sont l'advection de chaleur, d'humidité et d'aérosols, les inversions de T et q , la turbulence dans la CLA, la convection au-dessus des fractures, la microphysique et la turbulence dans les nuages, la réflexion de surface, la formation des mares de fonte, la superposition de couches de glace et de neige, l'échange turbulent de quantité de mouvement et de chaleur à la surface. Adapté de VIHMA et al. (2014).

aussi induire des changements significatifs dans la stabilité verticale et augmenter les interactions. Les nuages bas augmentent également les flux LW à la surface et modifient les bilans d'énergie et de masse de la banquise. Le changement de la phase nuageuse et la modification de la couverture nuageuse fractionnée en été conduisent à des modifications significatives du rayonnement visible-proche IR, et sa diminution facilite le chauffage de l'océan lorsque la glace de mer disparaît. Les flux de chaleur latente augmentant alors à la surface, plus de nuages peuvent être formés, conduisant à réguler le système, plus ou moins rapidement suivant les forçages à l'échelle locale et à grande échelle. Comme des campagnes de mesure l'ont montré par le passé, par exemple SHEBA (Surface Heat Budget of the Arctic Ocean) en mer de Beaufort en 1997-1998 (PERSSON et al., 2002) ou ASCOS (Arctic Summer Cloud Ocean Study) dans le centre de l'Arctique (TJERNSTROM et al., 2012), de même que des observations satellitaires, l'occurrence des nuages en phase mixte est importante en région arctique et l'impact de ces nuages sur le bilan radiatif de la surface est significatif. Leurs propriétés dépendent directement de la température et des interactions avec les aérosols qui permettent la nucléation de gouttelettes ou de cristaux de glace. Une meilleure compréhension des rétroactions entre les nuages, les aérosols et les surfaces de glace est par conséquent cruciale pour analyser et prédire l'évolution du climat en Arctique. Comprendre les changements en Arctique et leurs impacts globaux ne peut se faire que par une meilleure compréhension des processus physiques de petite échelle au sein du système arctique.

6.1.2 Méthodologie

Le travail que j'envisage, et qui a débuté avec les thèses de Lilian Loyer et de Julia Maillard que je co-encadre, porte sur l'étude et la représentation des interactions atmosphère-glace-océan en région arctique, ce qui permettra une meilleure compréhension du bilan d'énergie surface-atmosphère avec une attention toute particulière à la contribution des processus de petite échelle. Il s'agit en particulier de mieux représenter les processus dynamiques (rayonnement, humidité...) et physico-chimiques (interactions avec les aérosols) conduisant à la formation nuageuse dans cette région et aux interactions entre la CLA, la troposphère libre et la surface.

Dans le cadre du projet innovant IAOOS (Ice-Atmosphere-Ocean Observing System), développé par le LATMOS et LOCEAN entre 2013 et 2019, un système d'observations intégré dans l'océan Arctique permet de collecter simultanément et en temps réel des informations relatives à

l'état des couches supérieures de l'océan, de la basse atmosphère et de la glace de mer arctique. Des bouées autonomes ont été déployées chaque année (Figure 6.2) afin de suivre les changements en cours et de mieux comprendre les processus d'interaction entre les différents milieux (<http://iaoos.ipev.fr/>). Ces changements concernent en particulier le bilan énergétique à la surface et plus particulièrement le bilan radiatif qui va être conditionné par les propriétés de surface dans les domaines spectraux infrarouge et visible. La température de brillance, la réflectance de surface et leurs variabilités sont ainsi des indicateurs pertinents des propriétés de surface et de leur homogénéité (type de neige/glace, fragmentation de la banquise, océan...). Les paramètres météorologiques et radiométriques sont mesurés à la surface et des profils verticaux des propriétés des aérosols et des nuages sont obtenus à l'aide d'un lidar à rétrodiffusion autonome, complémentaires des observations satellitaires (CALIPSO, CloudSat, MODIS). D'autres données sur la neige, la glace et l'océan, notamment via des profileurs, sont mesurées simultanément.

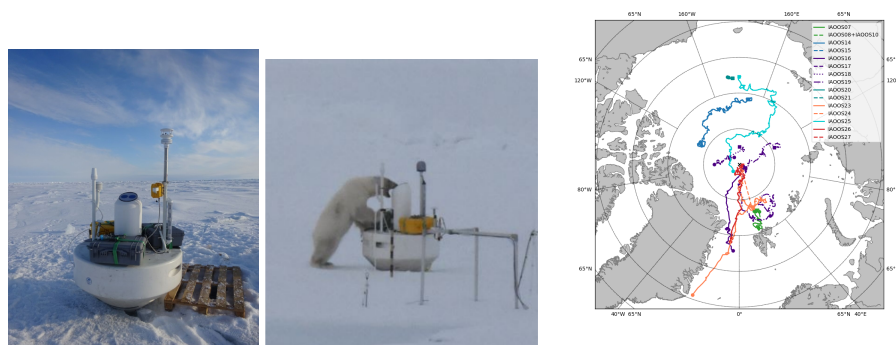


FIGURE 6.2 Photos de deux bouées IAOOS déployées dans l'océan Arctique et carte de la dérive des bouées IAOOS.

Le travail que je souhaite mener porte d'abord sur la paramétrisation d'interface surface-atmosphère du modèle Polar-WRF dans le cadre d'observations IAOOS réalisées pendant la campagne N-ICE basée sur la dérive du brise-glace norvégien Lance au Nord du Svalbard entre janvier et juin 2015 (Figure 6.3). À partir de résultats de simulations réalisées pendant cette période, on cherche à comparer les températures (de surface, mais aussi dans la neige et la glace), les luminances nettes LW et SW, les épaisseurs de neige et les distributions nuageuses aux observations. Le modèle sert également à réaliser une étude de fermeture du bilan d'énergie à la surface en analysant l'évolution des flux radiatifs et des flux de chaleur turbulents. Les résultats pourront être ensuite spatialisés et étendus temporellement à partir des observations effectuées sur les autres bouées IAOOS. Enfin, ces études pourront être mises à profit pour améliorer la représentation des processus clés dans la CLA en zone continentale, par exemple en Alaska dans le cadre du projet ALPACA (ALaskan Pollution Arctic Chemistry Analysis).

La structure de la CLA est dominée par deux régimes : soit proche de la neutralité (adiabatique) et surmontée d'une couche d'inversion thermique en altitude, ou bien stable au sein d'une inversion de surface. Quand des nuages bas, d'épaisseur optique suffisante apparaissent, une couche mélangée nuageuse, résultant des circulations turbulentes engendrées par le refroidissement radiatif au sommet du nuage (MORRISON et al., 2012), est observée entre le sommet du nuage et quelques centaines de mètres en dessous de la base du nuage. Cette couche nuageuse est souvent distincte de la CLA en dessous, mais les deux sont parfois couplées dynamiquement et



FIGURE 6.3 Photos du brise-glace Lance et du camp de glace (dont le mât instrumenté) lors de la campagne N-ICE en 2015.

thermodynamiquement (M. SHUPE et al., 2013). Quoique les processus responsables de cette situation de couplage ne sont pas parfaitement clairs, ils sont importants pour le transport vertical de chaleur, d'humidité, d'aérosols et d'autres constituants atmosphériques à travers la troposphère arctique stratifiée (SEDLAR et al., 2012; SOLOMON et al., 2011).

Le défi pour les processus atmosphériques est de représenter l'effet de l'hétérogénéité dans des conditions stables et neutres évoluant en conditions instables lorsque la surface est réchauffée par le rayonnement solaire absorbé ou quand des fractures se forment, et de déterminer les changements relatifs dans le bilan d'énergie de surface. La représentation des couches limites stables dans les modèles atmosphériques 3D a fait l'objet de nombreuses études ces dernières années (HOLTS-LAG et al., 2013; VIHMA et al., 2014; STERK et al., 2015). De nouvelles paramétrisations ont ainsi été développées pour tenir compte de conditions de surface modifiées (LÜPKES et al., 2012; TETZLAFF et al., 2015) et pour mieux prendre en compte les changements de stabilité lorsque les propriétés de surface varient comme cela est le cas pour l'océan (LECOMTE et al., 2014). Elles sont généralement basées sur une détermination des coefficients d'échange à la surface pour mieux représenter la turbulence en conditions stables et neutres en considérant les propriétés structurales de surface (LÜPKES et al., 2012; LÜPKES et al., 2013; CASTELLANI et al., 2014). Il sera utile dans notre travail de comparer les résultats produits par différentes paramétrisations optimisées pour mieux représenter les processus de transport vertical et le mélange dans la CLA, et d'améliorer ces paramétrisations. Il s'agira notamment d'évaluer la sensibilité des flux de matière et d'énergie dans la couche atmosphérique de surface en fonction des propriétés structurales de la surface (formation de crêtes, de fractures ou de lacs de fonte). Des versions 1D (SCM) et 3D à haute résolution (quelques centaines de mètres de résolution horizontale, permettant de tenir compte de l'advection) du modèle Polar-WRF seront utilisées pour traiter des conditions initiales et aux limites en utilisant les observations disponibles (température de surface satellitaire et sa variabilité, étendue de glace de mer et structure fractionnée, épaisseur de neige et hypothèses sur la rugosité de surface). Cette approche suivra celle utilisée par STERK et al. (2013) et tirera parti des études précédentes menées avec Polar-WRF au LATMOS et dans la communauté (BROMWICH et al., 2013). Plusieurs paramétrisations des flux de surface (chaleurs sensible et latente, quantité de mouvement) seront testées (LÜPKES et al., 2012) et la formation nuageuse associée sera analysée dans un test de sensibilité. Les résultats seront comparés aux observations.

6.1.3 Premiers résultats

Nous avons commencé ce travail en comparant les variables météorologiques simulées par Polar-WRF et interpolées tout au long de la dérive du brise-glace pendant N-ICE. L'évolution de la température et des vents est bien reproduite par le modèle (Figure 6.4) et représente correctement la transition de l'hiver à l'été, avec une forte hétérogénéité en hiver due au passage de systèmes dépressionnaires à méso-échelle (zones grisées pour des pressions inférieures à 998 hPa).

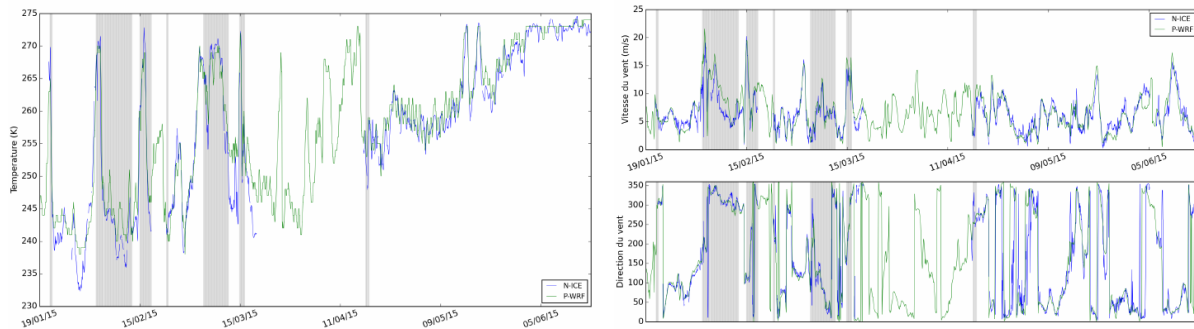


FIGURE 6.4 Comparaison de l'évolution temporelle de la température à 2 m, de la vitesse et de la direction du vent à 10 m issues de Polar-WRF (vert) et de N-ICE 2015 (bleu).

En revanche, malgré une modification de la paramétrisation de l'albédo de neige avec des valeurs bornées par les limites suggérées par D. K. PEROVICH et POLASHENSKI (2012), une diminution drastique de l'albédo a été simulée à la fin du printemps et en été, alors qu'elle ne figurait pas dans les observations. Dans le même temps, l'épaisseur de neige subit une forte décroissance en été, lorsque l'angle zénithal diminue et la température augmente, responsable de la chute de l'albédo en fin de période (Figure 6.5).

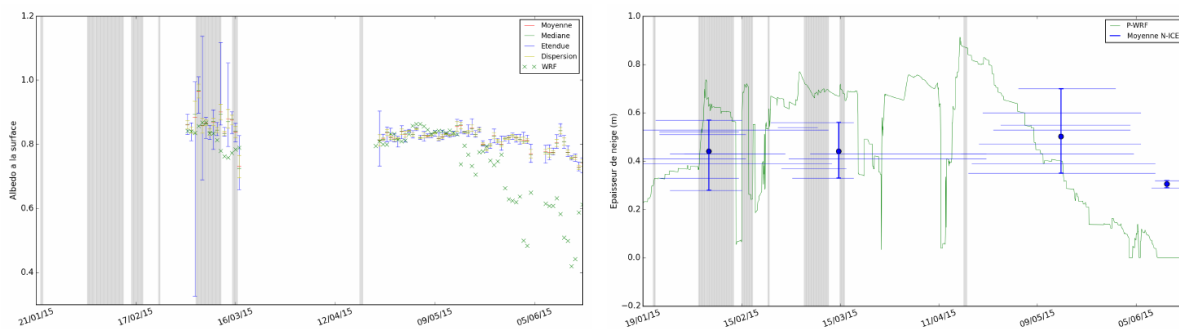


FIGURE 6.5 Comparaison de l'évolution temporelle de l'albédo de surface et de l'épaisseur de neige issus de Polar-WRF (vert) et de N-ICE 2015 (bleu). Les différents traits bleus sur une même période représentent des observations de différents instruments.

La comparaison des flux radiatifs a mis en évidence des différences significatives pour tous les flux sauf pour le LW montant, en raison d'un bon accord sur la température de peau (Figure 6.6). On observe ainsi une large sous-estimation du flux LW descendant et, à l'inverse, une forte surestimation du flux SW descendant (et donc du SW montant par effet albédo). Nous avons émis l'hypothèse que ces écarts importants devaient être liés à une mauvaise représentation de la couverture nuageuse : une couverture nuageuse insuffisante émettrait de facto moins de LW descendant, tandis qu'elle n'atténuerait pas assez le SW descendant. Une comparaison aux mesures lidar de la bouée IAOOS a mis en évidence une bonne détermination des hauteurs des bases des nuages en

hiver et au début du printemps, mais une tendance claire du modèle à les sous-estimer fortement à proximité immédiate de la surface à partir de la fin avril (Figure 6.6). C'est donc bien l'absence de nuages bas à la fin du printemps et en été qui est responsable de la sous-estimation du flux LW descendant et de la surestimation du flux SW descendant transmis. Notre étude a enfin souligné la sensibilité très forte des flux de chaleur sensible et latente lorsque la fraction de glace est inférieure à 1. Les hétérogénéités de surface semblent donc bien jouer un rôle majeur dans le bilan énergétique à la surface. Notons que l'ordre de grandeur des flux radiatifs est de 200 W m^{-2} alors que ceux des flux turbulents sont compris entre 5 et 20 W m^{-2} . Une imprécision de 5 W m^{-2} fera alors ressortir une incertitude relative plus grande sur les flux turbulents que sur les flux radiatifs. Nous avons montré que la température à 2 m était raisonnablement reproduite par le modèle grâce à une compensation d'erreurs sur les flux radiatifs et turbulents. Il est par conséquent nécessaire de poursuivre ce travail permettant de mieux comprendre les interactions surface-nuages-rayonnement.

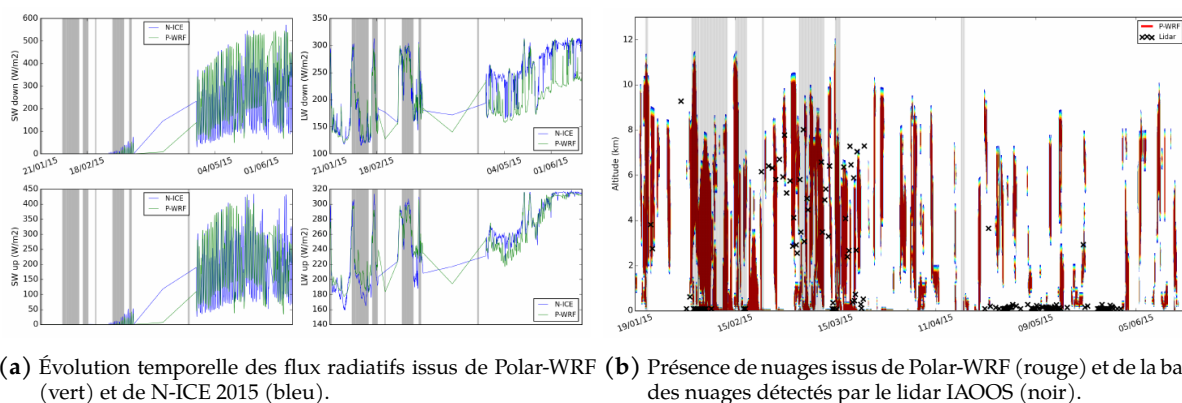


FIGURE 6.6 Flux radiatifs et nuages.

Nous avons ensuite cherché à exploiter davantage les mesures effectuées à partir des instruments lidar embarqués sur l'ensemble des bouées IAOOS. Après correction de l'indice de givre sur le hublot du lidar et déconvolution des signaux ayant saturé le détecteur par la présence de nuages bas, les signaux lidar ont pu être exploités pour déterminer quelques propriétés importantes sur les nuages. En particulier, les valeurs du rapport lidar S (rapport des coefficients d'extinction et de rétrodiffusion des aérosols) présentent une variabilité saisonnière marquée avec des valeurs médianes significativement plus fortes en été (21.9) qu'en automne (15.1) (Figure 6.7). Cela tend à indiquer des différences microphysiques sur les nuages d'été et d'automne, étant donné que le rapport lidar est fonction de la taille, de la forme et de la densité des hydrométéores. De manière analogue, une dépendance saisonnière nette est obtenue pour les épaisseurs optiques des nuages (Cloud Optical Depth : COD) avec des maxima au début de l'automne et au printemps et des minima en été (Figure 6.7). Ces résultats sont en accord avec des travaux réalisés à partir de données satellitaires, notant un minimum d'épaisseur optique en été au-dessus de l'Arctique. Nos résultats préliminaires mettent enfin en évidence une différence de température significative à la fin de l'automne entre les profils détectant au moins un nuage bas et les autres. Les profils en ciel clair présentent ainsi une baisse de température pouvant atteindre 10°C , cette différence étant moins marquée en été (rôle du rayonnement SW).

Nous nous efforçons enfin d'exploiter les mesures de fond de ciel des systèmes lidar (dans un cône de petit angle solide pointant au nadir) pour savoir si ces derniers pourraient servir d'instru-

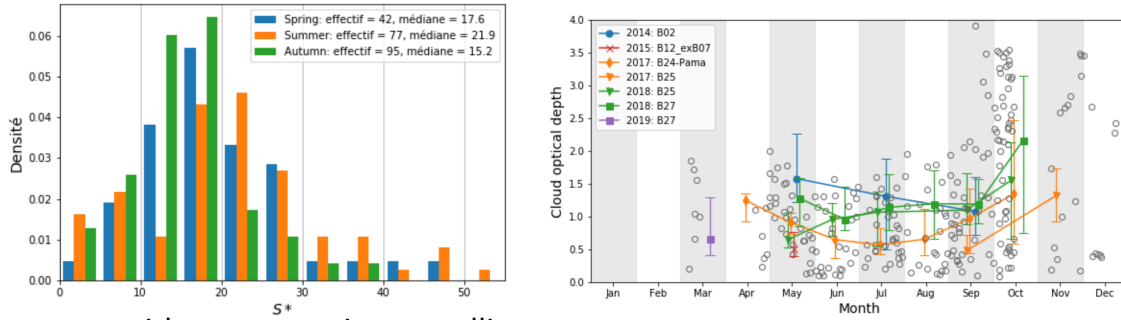


FIGURE 6.7 Histogramme des rapports lidar obtenus à partir des bouées IAOOS en fonction de la saison et évolution temporelle des épaisseurs optiques des nuages pour chaque bouée exploitée.

ments capables de mesurer alternativement les flux hémisphériques diffusés dans le domaine SW. Dans les conditions où l'épaisseur optique des nuages est suffisamment importante (supérieure à 2) pour que le flux diffus soit dominant, les résultats sont très encourageants : il sera possible d'utiliser le lidar comme radiomètre SW, obtenant au passage une estimation de l'épaisseur optique des nuages par comparaison avec un code de transfert radiatif (Streamer). Cette dernière permet une évaluation simple du flux SW direct, mais aussi du flux LW descendant si l'on considère une paramétrisation simple comme celle de MINNIS et al. (1993) (Figure 6.8). La connaissance des épaisseurs optiques et des différentes composantes des flux radiatifs sur l'ensemble des observations des bouées IAOOS constituera une base de données sur 5 années, permettant une évaluation inédite des performances du modèle Polar-WRF.

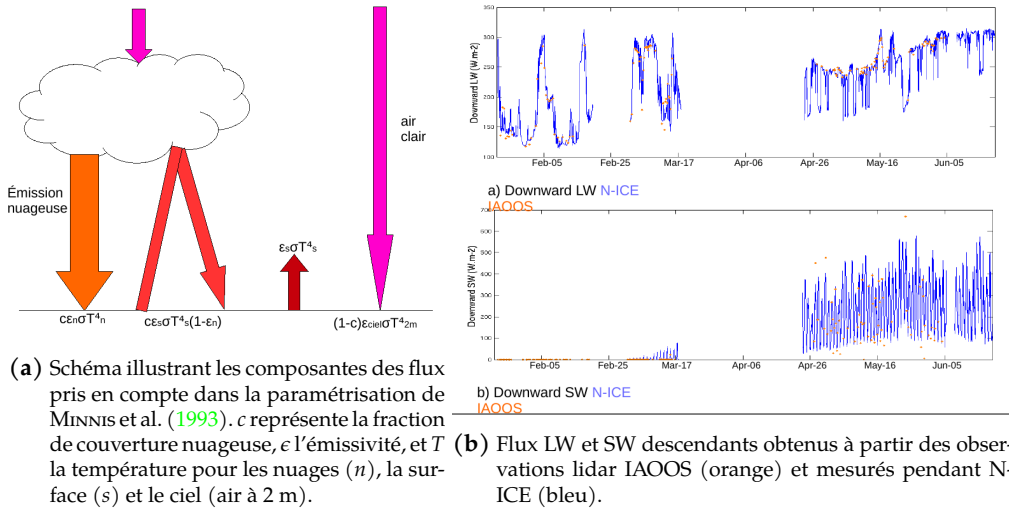


FIGURE 6.8 Flux radiatifs et paramétrisation de Minnis.

6.2 Interactions aérosols-nuages en Arctique

6.2.1 Contexte et objectifs

Les nuages sont présents en Arctique toute l'année, et leur occurrence dépend de la saison et de leur localisation. Ils exercent un impact considérable sur le bilan d'énergie de surface et la CLA via le forçage radiatif, la turbulence générée par les nuages et la précipitation (CURRY et al., 1996; M. D. SHUPE et INTRIERI, 2004; INTRIERI et al., 2002; PERSSON, 2012). On suspecte également les processus associés aux nuages de jouer un rôle majeur dans le déclin de la banquise observé pendant les dernières décennies (KAY et GETTELMAN, 2009). Malheureusement, les modèles évalués à l'aide d'observations en Arctique montrent une mauvaise représentation de la phase du nuage en fonction de l'altitude et ne représentent pas bien la masse totale d'eau condensée (DE BOER et al., 2012), avec une dispersion entre les modèles particulièrement importante en hiver (KARLSSON et SVENSSON, 2011). Ces biais peuvent avoir de profondes conséquences sur le bilan d'énergie à la surface et la période de fonte de la glace (INOUE et al., 2006). Les incertitudes exposées par ces études résident dans quelques-uns des processus physiques fondamentaux du système : partitionnement de phase, maintien de l'eau liquide surfondue en présence de glace, représentation des réponses dynamiques des nuages, interactions entre nuages, CLA, aérosols, rayonnement et processus de surface (Figure 6.9). Par exemple, de nombreux modèles à grande échelle partitionnent la phase nuageuse grâce à une simple fonction diagnostique de la température, alors que les observations montrent clairement que la température ne peut, à elle seule, expliquer la variation de phase (TURNER, 2005; M. D. SHUPE et al., 2006). En général, les difficultés des modèles sont associées à l'incapacité de résoudre ou de paramétrer les processus dynamiques et microphysiques importants à l'échelle du nuage qui conduisent à une séparation entre phases liquide et glacée à des échelles relativement petites. Ces problèmes résultent également d'une mauvaise compréhension des interactions nuages-aérosols, avec une très faible connaissance des concentrations de fond présentes et des modes de nucléation actifs.

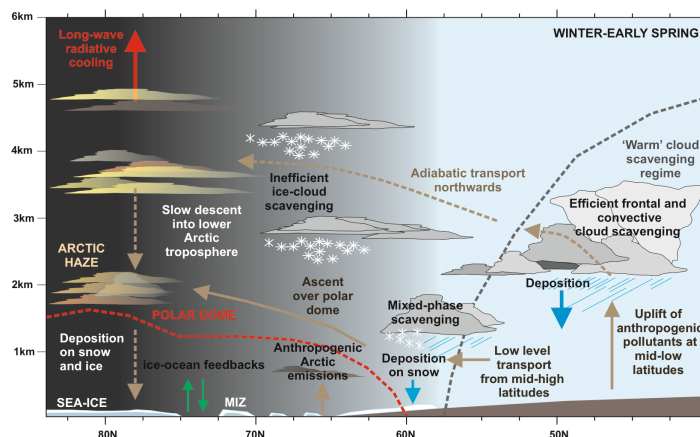


FIGURE 6.9 Diagramme indiquant les processus clés liés à l'émission, au transport, au vieillissement et au dépôt de pollution en Arctique et aux interactions aérosols-nuages à la fin de l'hiver et au début du printemps. Source : S. ARNOLD et al. (2016).

Or, en raison de la combinaison de la stabilité statique de l'atmosphère arctique, la persistance des nuages bas et le temps de vie relativement long des aérosols pendant la saison de la brume arctique, l'impact des aérosols sur les propriétés microphysiques et optiques des nuages peut être plus grand qu'ailleurs sur Terre (T. GARRETT et al., 2004). Dans le rapport AMAP (AMAP, 2015) auquel j'ai participé, les effets indirects n'étaient pas inclus dans les meilleures estimations des effets climatiques des aérosols en raison des grandes incertitudes et de la dispersion importante dans les résultats (IPCC, 2013). Ce sujet est aussi identifié comme l'un des défis majeurs par YOPP (Year of Polar Prediction), un élément clé du Polar Prediction Project. Le défi est d'autant plus grand qu'environ la moitié des nuages en Arctique sont des nuages en phase mixte (MPC : Mixed-Phase Clouds) (M. D. SHUPE et al., 2006; MIOCHE et al., 2015) dont la représentation est source de nombreuses incertitudes dans les simulations du climat arctique (MORRISON et al., 2012). Malgré leur état thermodynamique instable lié au processus de Wegener-Bergeron-Findeisen, ces MPC persistent pendant plusieurs jours sous une variété de conditions météorologiques grâce à un subtil équilibre des processus dynamiques, radiatifs et microphysiques (M. D. SHUPE et INTRIERI, 2004; M. D. SHUPE et al., 2011; MORRISON et al., 2011). Ils se présentent sous la forme de couches stratiformes de gouttelettes liquides au voisinage du sommet des nuages depuis lesquelles les cristaux de glace se forment et précipitent. Les aérosols peuvent perturber la persistance des MPC en changeant leurs propriétés microphysiques, lorsqu'ils agissent comme CCN ou IN (T. J. GARRETT et ZHAO, 2006; PRENNI et al., 2007). Comme la phase glace est généralement favorisée d'un point de vue thermodynamique dans les MPC arctiques, la nucléation de glace apparaît certainement comme un processus clé de l'impact des aérosols sur le cycle de vie des MPC. Mieux comprendre les processus responsables de la glaciation au sein du nuage est crucial (Figure 6.10).

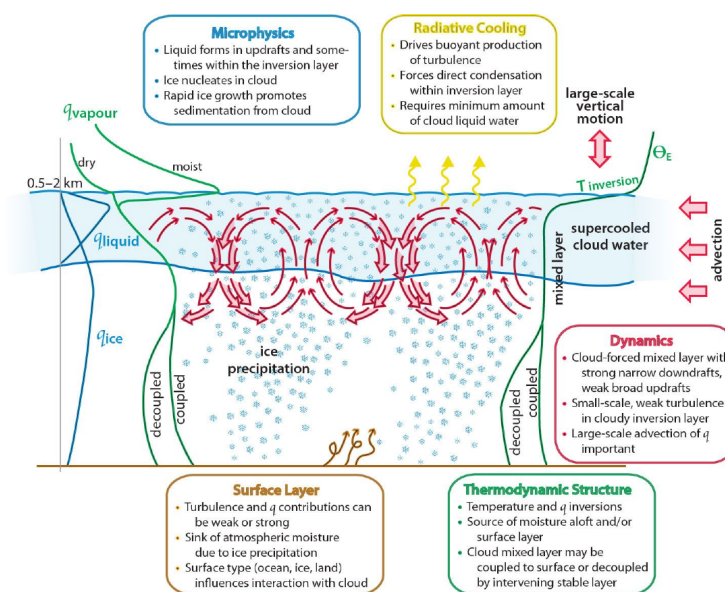


FIGURE 6.10 Processus et facteurs principaux impliqués dans le cycle de vie des MPC. Adapté de MORRISON et al. (2012).

Cette partie de mon programme de recherche vise à mieux comprendre et modéliser des processus clés liés aux interactions aérosols-nuages en Arctique. L'objectif à long terme est de mieux quantifier les effets radiatifs indirects des aérosols dans cette région. À court et moyen termes, le travail portera sur les interactions entre les aérosols naturels (volcaniques et de feux de biomasse)

et les nuages de glace et en phase mixte en Arctique. Cette démarche repose sur une hypothèse initialement proposée par BLANCHET et GIRARD (1994), liée à un processus de rétroaction impliquant les aérosols acides, les nuages, le rayonnement et la circulation atmosphérique à grande échelle, appelé effet de désactivation. Des études précédentes avaient montré que les aérosols submicroniques étaient en effet enrobés d'une fraction significative de sulfates hautement acides (BIGG, 1980). Les volcans actifs contribuent notamment par leur dégazage à acidifier les aérosols naturels en région boréale. Au printemps et en été, lorsque le transport atmosphérique à grande échelle n'est pas aussi important qu'en hiver, les feux de forêts boréales deviennent une source locale importante d'aérosols organiques, formant des SOA. L'incorporation d'acide sulfurique et de certains aérosols organiques dans l'air arctique affecte les propriétés de congélation de l'eau liquide condensée à la surface des aérosols existants, généralement en abaissant le point de congélation et en retardant la formation de cristaux de glace. Les mesures en laboratoire et in situ ont montré qu'à basse température ($< -30^{\circ}\text{C}$), le revêtement d'acide sur les noyaux glaçogènes (IN) pouvait réduire leur capacité à nucléer des cristaux de glace (EASTWOOD et al., 2008; EASTWOOD et al., 2009). Par conséquent, leur concentration est réduite entraînant une plus faible concentration de plus gros cristaux de glace en raison d'une diminution de la compétition pour une humidité disponible similaire (GIRARD et al., 2005; GIRARD et al., 2013). Ces résultats ont été confirmés par des observations satellitaires, montrant que les nuages de glace optiquement fins sont composés de gros cristaux ($> 30\mu\text{m}$) en faible concentration ($< 10\text{ L}^{-1}$) (TIC2 : « Type of Ice Clouds 2 ») dans des masses d'air polluées (i.e. riches en sulfates), alors qu'ils sont constitués d'une grande concentration de plus petits cristaux dans les masses d'air non polluées (TIC1) (GRENIER et BLANCHET, 2010). JOUAN et al. (2012) et JOUAN et al. (2014) ont confirmé via des mesures in situ que les aérosols acidifiés avaient un impact significatif sur la microstructure des nuages glacés nordiques lors de la campagne de mesures ISDAC (Indirect and Semi-Direct Aerosol Campaign) en avril 2008. Les conséquences immédiates sont une augmentation des taux de sédimentation et de précipitation des cristaux de glace, favorisant un taux de déshydratation plus fort dans la basse troposphère, ce qui atténue l'effet de serre de la vapeur d'eau conduisant à une augmentation des taux de refroidissement en surface (GIRARD et al., 2005). Cet effet est appelé rétroaction déshydratation-effet de serre, ou DGF (Dehydration Greenhouse Feedback). Ces modifications de la microstructure de ces nuages glacés ont donc un effet important sur leurs propriétés radiatives (GIRARD et ASL, 2014) et potentiellement sur la circulation atmosphérique à plus grande échelle (RIGOR et al., 2000; X. WANG et KEY, 2003). En effet, une diminution du forçage radiatif LW au TOA peut conduire à un refroidissement de l'atmosphère et ainsi favoriser la formation de nuages, avec une diminution de l'effet de serre de la vapeur d'eau et une augmentation des précipitations. Ce refroidissement en Arctique en hiver peut être assez grand pour renforcer la circulation troposphérique à grande échelle associée au front polaire via l'intensification de la zone barocline.

6.2.2 Méthodologie

Avec Éric Girard, professeur à l'UQAM, venu travailler au sein de Sorbonne Université pour une année sabbatique (2016-2017), nous nous sommes intéressés à l'impact des aérosols atmosphériques sur la microstructure physique des nuages glacés en Arctique et leur formation. Lorsque ces aérosols sont acides, les processus de nucléation de la glace sont en partie désactivés, ce qui mo-

difie la formation nuageuse en région boréale. Nous avons pu envisager de modifier un schéma de microphysique du modèle WRF-Chem pour coupler les concentrations de différents composés chimiques (poussières minérales, sels de mer...) avec la nucléation des cristaux de glace. Une première étape de ce travail a été réalisée dans le cadre de la thèse de Setigui Keita, que nous avons encadré. Son rôle a consisté à confronter les résultats de ce couplage avec des observations in situ obtenues lors de différentes campagnes en zone arctique (ISDAC en avril 2008 en Alaska, NET-CARE en avril 2015 au Nord du Canada) et des données issues de produits satellitaires à plus grande échelle (CALIPSO/CloudSat). Pour faciliter ce travail en coopération, le statut de professeur associé à l'UQAM au sein du département des sciences de la Terre et de l'atmosphère m'a été accordé depuis le 23 avril 2018, quelques mois avant la disparition d'Éric.

Les modèles arrivent difficilement à dissocier les deux types de nuages de glace TIC1 et TIC2. L'utilisation d'un paramétrage approprié de la nucléation hétérogène des cristaux est essentielle pour représenter correctement les nuages de glace dans les modèles météorologiques et climatiques et pour comprendre ensuite leurs interactions avec les aérosols et le rayonnement. Dans la plupart des modèles en effet, la nucléation des cristaux de glace via le dépôt de vapeur d'eau ou le gel par immersion de gouttelettes liquides est encore paramétrée par une simple fonction de la température et de la sursaturation par rapport à la glace, calquée sur des relations empiriques qui présentent l'avantage d'être simples et facilement applicables dans un modèle climatique à un coût de calcul modeste. Mais les observations pendant les campagnes de terrain ont montré que les concentrations d'IN pouvaient varier d'un ordre de grandeur ou plus pour une température et une sursaturation par rapport à la glace données. L'originalité du schéma microphysique que nous développons réside dans l'approche couplée de la nucléation hétérogène de la glace avec les aérosols. Ce schéma couplé permet de prendre en compte la variation spatiale (horizontale et verticale) et temporelle des propriétés granulométriques et physicochimiques des IN. Récemment, des paramétrisations prenant en compte la composition chimique des IN ont été développées pour des particules de poussières, enrobées ou non d'un revêtement acide (acide sulfurique, acide nitrique, sulfate d'ammonium, SOA), et qui sont des bons IN (LOHMANN et DIEHL, 2006; EASTWOOD et al., 2008; EASTWOOD et al., 2009). Ces paramétrisations sont basées sur la théorie classique de la nucléation hétérogène de glace et comportent des paramètres inconnus comme l'angle de contact θ et les sites de surface actifs. Par conséquent, des études expérimentales en laboratoire ont été utilisées pour obtenir un θ constant (pour chaque espèce chimique) en supposant que la surface des IN est énergétiquement uniforme pour la nucléation de glace (EASTWOOD et al., 2008).

6.2.3 Premiers résultats

Dans un premier temps, nous avons ainsi implémenté le nouveau paramétrage dans le schéma microphysique de MILBRANDT et YAU (2005) utilisé dans WRF, en fixant θ aux deux valeurs extrêmes (12° et 26°) proposées par EASTWOOD et al. (2008) et EASTWOOD et al. (2009). Ces deux valeurs correspondent respectivement à des IN typiques de poussières terrigènes (oxydes métalliques, particules d'argile : kaolinite, montmorillonite ...) et à des IN du même type mais entourés d'une solution acide, l'acidité étant contrôlée par le sulfate. Les conditions synoptiques favorisent le transport de masses d'air en provenance de trois zones potentielles d'émissions de SO_2 jusqu'en Alaska pendant la période des TIC2 : émissions anthropiques à l'Est de la Chine, émissions de combustion

de biomasse en Sibérie (ANCELLET et al., 2019), et émissions volcaniques dans la région du Kamtchatka et des Îles Aléoutiennes (Figure 6.11). Les observations satellitaires (OMI) et aéroportées ont bien confirmé une acidité élevée à proximité des nuages TIC2 où l'humidité est faible. Le modèle intégrant le paramétrage a été évalué, d'une part, avec quatre cas d'étude identifiés pendant les vols ISDAC (deux TIC1 et deux TIC2), et d'autre part, avec les données satellitaires DARDAR (raDAR/liDAR), ce qui a permis d'avoir à la fois une représentation spatiale et temporelle des TIC à plus grande échelle.

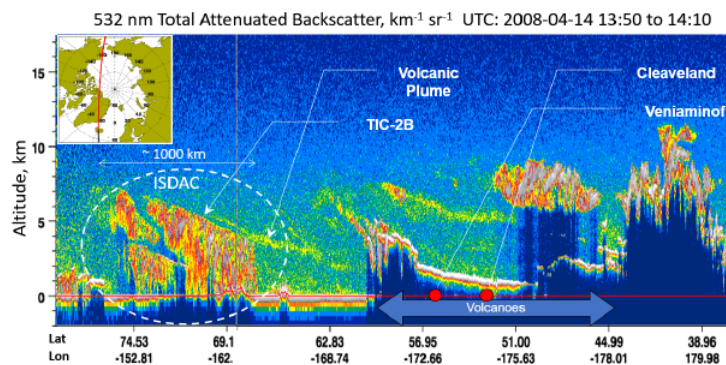


FIGURE 6.11 Coupe verticale du coefficient de rétrodiffusion lidar le long d'une orbite CALIPSO prise environ 12 h avant le vol ISDAC F21 (cas pollué), montrant distinctement plusieurs panaches volcaniques et la formation d'un nuage fin de glace précipitant (TIC2) au voisinage des panaches d'aérosols sur la région de la campagne ISDAC. Source : KEITA et al. (2019).

Trois versions du schéma microphysique ont ainsi été utilisées dans nos simulations. WRF se rapporte à la version originale du schéma de MILBRANDT et YAU (2005), WRF_p et WRF_np représentent respectivement les versions modifiées de ce schéma à partir de la théorie classique de la nucléation pour les masses d'air polluées (acides, $\theta = 26^\circ\text{C}$) et non polluées (propres, $\theta = 12^\circ\text{C}$), respectivement. Les résultats de cette étude ont montré que le modèle WRF avec le schéma original pour la nucléation hétérogène de la glace ne parvenait pas à simuler correctement la plupart des nuages de glace observés. En effet, le contenu en glace IWC (Ice Water Content) est fortement sous-estimé de plusieurs ordres de grandeur dans la simulation WRF le long de tous les vols à tous les niveaux verticaux (Figure 6.12). Cela révèle la faible performance de la version de base de WRF pour représenter les nuages de glace à faible IWC (de l'ordre de 0.01 g/kg ou moins). À l'inverse, l'utilisation de la théorie classique de la nucléation de glace améliore nettement la représentation du IWC localement (vols ISDAC) et à plus grande échelle (DARDAR) dans les nuages fins de glace arctiques (Figure 6.12). De plus, la différence dans les contenus en glace en utilisant différentes valeurs de θ est inférieure à l'écart entre la simulation de référence et les observations.

Les résultats des modifications effectuées sur le schéma microphysique montrent également que l'utilisation des simulations WRF_np et WRF_p améliore considérablement les résultats en termes de concentration en nombre et rayon des cristaux de glace à la fois dans les nuages TIC1 et TIC2, suivant le type de masse d'air dans laquelle le nuage s'était formé (Figure 6.13). Les résultats à plus grande échelle issus des comparaisons avec les données DARDAR confirment les conclusions sur les profils verticaux obtenus durant ISDAC, ce qui suggère que nos résultats ne sont pas seulement une caractéristique particulière de la campagne sur un site spécifique, mais peuvent s'appliquer plus généralement aux nuages de glace fins en Arctique.

Dans un second temps, nous avons implémenté dans WRF-Chem un paramétrage de nuclé-

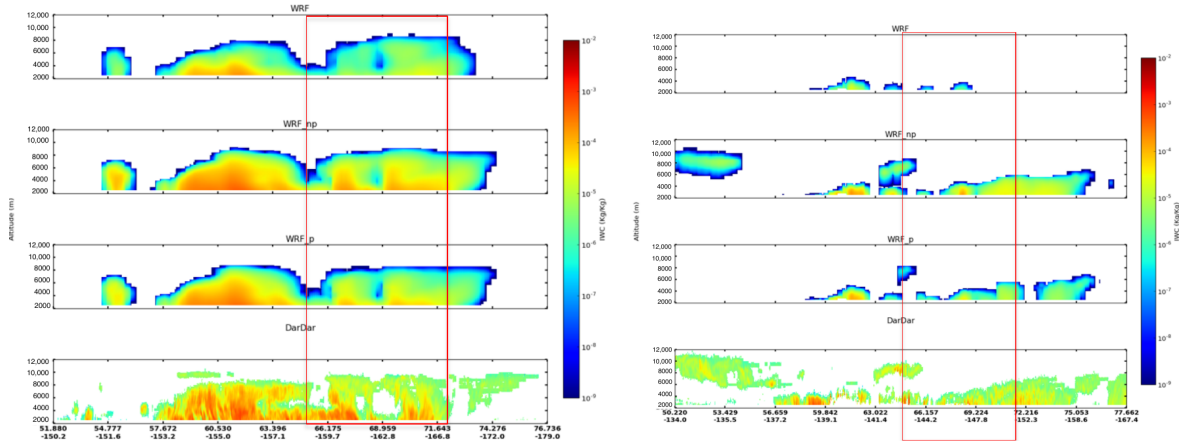


FIGURE 6.12 Coupes verticales de IWC observées par DARDAR et simulées (WRF, WRF_np, WRF_p) le long des traces CALIPSO à proximité des vols F12 (non pollué, à gauche) et F21 (pollué, à droite). Les rectangles rouges correspondent à la région dans laquelle les vols F12 et F21 ont été effectués. Source : KEITA et al. (2019).

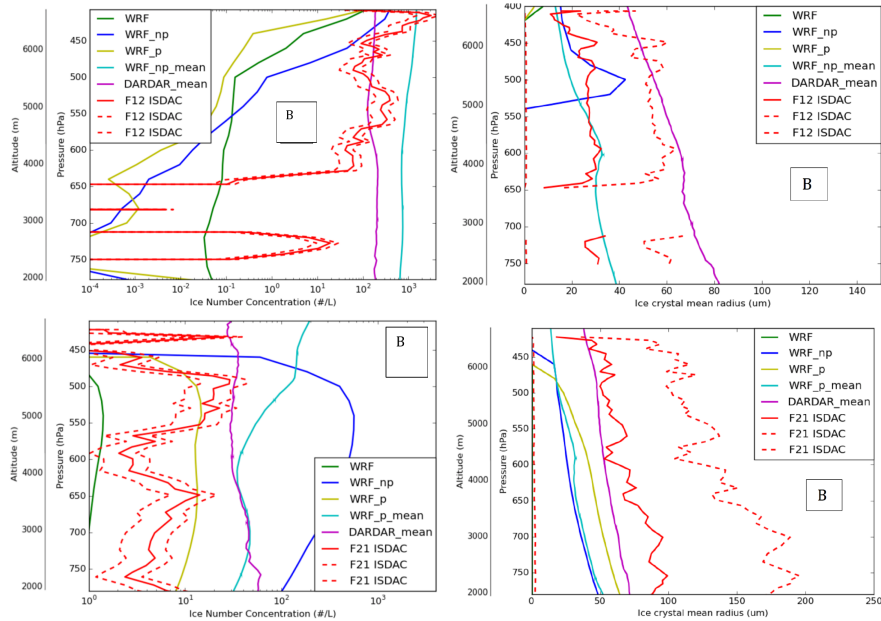


FIGURE 6.13 Concentrations en nombre (à gauche) et rayons moyens (à droite) des cristaux de glace observés et simulés (WRF, WRF_np, WRF_p) le long des vols F12 (non pollué, en haut) et F21 (pollué, en bas). Les lignes en pointillés rouges représentent la variabilité des observations ISDAC. Le profil moyen simulé le long de la trace du satelliste (WRF_np_mean) sur la zone encadrée en rouge (Figure 6.12) est également représenté, de même que le profil moyen DARDAR correspondant. Source : KEITA et al. (2019).

tion hétérogène de la glace couplé avec la chimie des aérosols MOSAIC (Zaveri et al., 2008) et confronté les résultats à des cas d'étude issus de la campagne ISDAC. Le degré d'acidité a été déterminé à partir du facteur de neutralisation, c'est-à-dire du rapport molaire entre ammonium et sulfate+nitrate (Fisher et al., 2011). Celui-ci permet de calculer l'angle de contact θ à partir d'une relation quadratique ou biquadratique. Nos résultats illustrent la piètre performance de la paramétrisation de base pour représenter les types de nuages glacés à faible IWC en Arctique et soulignent que nos paramétrisations améliorent de manière significative la représentation du IWC, particulièrement au sommet des nuages là où le processus de nucléation domine, dans les masses d'air polluées ou non. Les valeurs et les structures verticales des concentrations d'ammonium et de sulfate simulées correspondent plutôt bien aux concentrations moyennes observées, avec des contri-

butions connues attribuées aux sources volcaniques, présentant des valeurs plus élevées dans la moyenne troposphère. Les simulations utilisant notre nouveau paramétrage présentent des valeurs de θ plus élevées au sommet des TIC2, ce qui permet de différencier les cas acides et non acides comme cela était attendu, et montrent une faible sensibilité à la courbure de la relation entre θ et le facteur de neutralisation (quadratique ou biquadratique) (Figure 6.14).

Dans le cas d'un TIC1, la version de base sous-estime fortement la concentration en nombre de cristaux de glace d'au moins deux ordres de grandeur et surestime leur rayon moyen, ce qui conduit à une mauvaise représentation du type de nuage glacé, en le méprenant pour un TIC2. À l'inverse, notre nouvelle paramétrisation reproduit convenablement le type de nuage et sa structure microphysique représentative au sommet du nuage, où la nucléation de glace se produit (Figure 6.14). Les TIC2 observés sont caractérisés par une faible concentration en cristaux allant de 1 à 30 L^{-1} . L'enrobage acide des IN dans les TIC2 inhibe en effet leurs propriétés de nucléation en ralentissant le taux de nucléation par rapport à ceux observés pour des IN non enrobés. Par suite, cette décroissance du taux de nucléation augmente la vapeur d'eau en sursaturation disponible et permet la croissance rapide des cristaux de glace activés. Cela peut expliquer la persistance de basses concentrations en nombre et de rayons importants des cristaux de glace. Notre nouvelle paramétrisation permet de simuler ces concentrations dans la barre d'incertitude des observations, contrairement au schéma de référence, incapable de représenter un nuage persistant. Le rayon moyen des cristaux, plus grand que dans les TIC1, est également mieux approché (Figure 6.14). Malgré des améliorations notables, notre paramétrisation sous-estime néanmoins d'un facteur 2 le rayon moyen des TIC2. Cela peut être lié à l'absence de prise en compte de la sédimentation de cristaux de glace de type « diamond dust » qui explique les sous-estimations récurrentes des concentrations en cristaux de glace dans la partie basse des nuages. En résumé, les résultats montrent que le nouveau schéma est capable de représenter les caractéristiques microphysiques des TIC1 et TIC2 au sommet des nuages, là où la nucléation hétérogène de la glace est le processus le plus important et, dans certains cas, malgré un biais important dans les concentrations en nombre d'aérosols simulés par WRF-Chem sur l'Arctique. Ce nouveau paramétrage est donc un outil prometteur pour améliorer la simulation des propriétés des nuages de glace en Arctique et l'estimation du forçage radiatif associé.

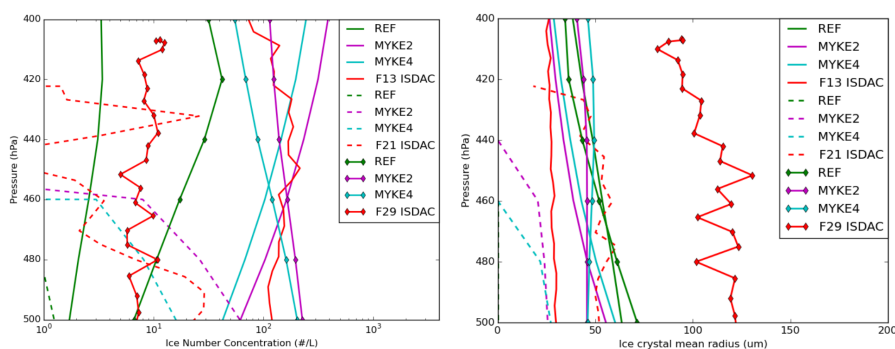


FIGURE 6.14 Profils verticaux des concentrations en nombre (gauche) et des rayons moyens (droite) des cristaux de glace observés (rouge) et simulés au long des vols F13 (TIC1), F21 et F29 (TIC2). REF (vert) désigne la version de base de WRF; MYKE2 et MYKE4 sont les versions modifiées du schéma de microphysique prenant en compte le couplage avec les aérosols grâce à une fonction quadratique (MYKE2) et biquadratique (MYKE4) de θ avec le facteur de neutralisation. Source : KEITA et al. (2020)

Des expériences récentes en laboratoire ont montré que l'hypothèse d'un angle θ constant n'était pas toujours appropriée (WHEELER et BERTRAM, 2012). La capacité de nucléation d'un IN dépend également de sa surface (taille). Par conséquent, une densité de probabilité est requise pour caractériser les angles de contact qu'un IN d'une composition chimique donnée peut avoir et ainsi tenir compte de la densité en sites actifs des aérosols pouvant servir d'IN (ULLRICH et al., 2017). Afin d'améliorer le modèle régional WRF-Chem, je propose :

1. de modifier la paramétrisation actuelle de nucléation de glace et d'implémenter une densité de probabilité de θ afin de mieux tenir compte des expériences de laboratoire ;
2. d'ajouter d'autres compositions chimiques de l'aérosol dans la paramétrisation de nucléation de glace, comme le carbone suie (STORELMO, 2017), les organiques qui sont fréquemment rencontrés en Arctique en hiver, ou encore des particules biologiques (bactéries, diatomées, grains de pollen, spores fongiques ...) capables de nucléer la glace (CHERNOFF et BERTRAM, 2010; HOOSE et MÖHLER, 2012; WEX et al., 2019) ;
3. de tester la nouvelle paramétrisation par rapport aux mesures in situ obtenues pendant les campagnes NETCARE en 2015, ACLOUD en 2017, AFLUX en 2019 et MOSAiC en 2019-2020 et par rapport aux observations satellitaires (CALIPSO, CloudSat, MODIS) dans des nuages de glace de moyenne et haute altitude d'une faible épaisseur optique et des MPC de basse couche plus fréquents et persistants. Cela permettra d'examiner en particulier l'impact des conditions environnementales (météorologie, origine et composition en aérosols des masses d'air polluées, type de surface, situation géographique) à grande échelle sur les propriétés microphysiques des nuages, et de définir de nouvelles paramétrisations simples reliant les contenus en glace et en eau surfondue aux contenus en aérosols ;
4. d'utiliser la nouvelle paramétrisation de nucléation de glace pour évaluer les effets radiatifs et en particulier l'effet DGF sur un domain pan-arctique. L'idée est d'étudier la sensibilité des résultats à la densité de probabilité de θ sur des périodes de temps plus longues et de s'intéresser aux effets des émissions d'aérosols anthropiques, volcaniques et de feux de biomasse dans les régions nordiques sur le rayonnement, les précipitations et la dynamique.

L'originalité de la recherche proposée provient du fait que les interactions aérosols-nuages ont été étudiées par de nombreux chercheurs sur la dernière décennie, mais seulement quelques études ont ciblé les nuages glacés ou les MPC en environnement très froid et aucune n'a été dédiée à l'effet DGF. Ce dernier est potentiellement important et la seule hypothèse de la littérature scientifique pouvant expliquer, au moins en partie, l'absence de réchauffement dans le centre de l'Arctique en hiver. Cette hypothèse reçoit de plus en plus d'attention de la part de la communauté internationale et a été reconnue comme un effet indirect des aérosols important à étudier (LOHMANN et HOOSE, 2009; IPCC, 2013). L'originalité de cette recherche vient aussi de l'approche suggérée : en plus de la modélisation, des observations satellitaires, in situ et en laboratoire sont utilisées pour mieux contraindre cette rétroaction complexe.

Bibliographie

- ABEL, S. J., J. M. HAYWOOD, E. J. HIGHWOOD, J. LI et P. R. BUSECK (2003). « Evolution of biomass burning aerosol properties from an agricultural fire in southern Africa ». In : *Geophysical Research Letters* 30.15. 1783.
- ACKERMAN, A. S., O. B. TOON, D. E. STEVENS, A. J. HEYMSFIELD, V. RAMANATHAN et E. J. WELTON (2000). « Reduction of Tropical Cloudiness by Soot ». In : *Science* 288.5468, p. 1042-1047.
- ACKERMAN, T. P. et O. B. TOON (1981). « Absorption of visible radiation in atmosphere containing mixtures of absorbing and nonabsorbing particles ». In : *Applied Optics* 20.20, p. 3661-3668.
- ADAM DE VILLIERS, R., G. ANCELLET, J. PELON, B. QUENNEHEN, A. SCHWARZENBOECK, J. F. GAYET et K. S. LAW (2010). « Airborne measurements of aerosol optical properties related to early spring transport of mid-latitude sources into the Arctic ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 10.11, p. 5011-5030.
- AHMADOV, R., S. MCKEEN, M. TRAINER, R. BANTA, A. BREWER, S. BROWN, P. M. EDWARDS, J. A. de GOUW, G. J. FROST, J. GILMAN, D. HELMIG, B. JOHNSON, A. KARION, A. KOSS, A. LANGFORD, B. LERNER, J. OLSON, S. OLTMANS, J. PEISCHL, G. PÉTRON, Y. PICHUGINA, J. M. ROBERTS, T. RYERSON, R. SCHNELL, C. SENFF, C. SWEENEY, C. THOMPSON, P. R. VERES, C. WARNEKE, R. WILD, E. J. WILLIAMS, B. YUAN et R. ZAMORA (2015). « Understanding high wintertime ozone pollution events in an oil- and natural gas-producing region of the western US ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 15.1, p. 411-429.
- AKAGI, S. K., J. CRAVEN, J. TAYLOR, G. MCMECKING, R. YOKELSON, I. BURLING, S. URBANSKI, C. WOLD, J. SEINFELD, H. COE et al. (2012). « Evolution of trace gases and particles emitted by a chaparral fire in California ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 12.3, p. 1397-1421.
- AKSOYOGLU, S., U. BALTENSPERGER et A. S. PRÉVÔT (2016). « Contribution of ship emissions to the concentration and deposition of air pollutants in Europe ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 16.4, p. 1895-1906.
- ALBRECHT Bruce, A. (1989). « Aerosols, Cloud Microphysics, and Fractional Cloudiness ». In : *Science* 245.4923, p. 1227-1230.
- ALLEN, R. J. et W. LANDUYT (2014). « The vertical distribution of black carbon in CMIP5 models : Comparison to observations and the importance of convective transport ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 119.8, p. 4808-4835.
- ALVARADO, M., J. LOGAN, J. MAO, E. APEL, D. RIEMER, D. BLAKE, R. COHEN, K.-E. MIN, A. PERRING, E. BROWNE et al. (2010). « Nitrogen oxides and PAN in plumes from boreal fires during ARCTAS-B and their impact on ozone : an integrated analysis of aircraft and satellite observations ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 10.20, p. 9739-9760.
- AMAP (1998). *AMAP assessment report : Arctic pollution issues*. Rapp. tech. Arctic Monitoring et Assessment Programme (AMAP), Oslo, Norway.
- (2011). *Assessment Programme (AMAP). 2011. The Impact of Black Carbon on Arctic Climate*. Rapp. tech. Arctic Monitoring et Assessment Programme (AMAP), Oslo, Norway.
- (2015). *AMAP Assessment 2015 : Black carbon and ozone as Arctic climate forcers*. Rapp. tech. Arctic Monitoring et Assessment Programme (AMAP), Oslo, Norway. Chap. Modeled and measured distribution and seasonality of short-lived climate forcers in the Arctic, p. 53-70.
- (2017). *Adaptation Actions for a Changing Arctic (AACA)-Baffin Bay/Davis Strait Region Overview Report*. Rapp. tech. Arctic Monitoring et Assessment Programme (AMAP), Oslo, Norway.
- ANCELLET, G., N. DASKALAKIS, J.-C. RAUT, D. TARASICK, J. HAIR, B. QUENNEHEN, F. RAVETTA, H. SCHLAGER, A. J. WEINHEIMER, A. M. THOMPSON, B. JOHNSON, J. L. THOMAS et K. S. LAW (2016). « Analysis of the latitudinal variability of tropospheric ozone in the Arctic using the large number of aircraft and ozonesonde observations in early summer 2008 ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 16.20, p. 13341-13358.
- ANCELLET, G., I. E. PENNER, J. PELON, V. MARIAGE, A. ZABUKOVIC, J.-C. RAUT, G. KOKHANENKO et Y. S. BALIN (2019). « Aerosol monitoring in Siberia using an 808 nm automatic compact lidar ». In : *Atmospheric Measurement Techniques* 12.1, p. 147-168.
- ÅNGSTRÖM, A. K. (1929). « On the atmospheric transmission of sun radiation and on dust in the air ». In : *Geogr. Ann.* 11, p. 156-166.
- ARNOLD, S., K. LAW, C. BROCK, J. THOMAS, S. STARKWEATHER, K. VON SALZEN, A. STOHL, S. SHARMA, M. LUND, M. FLANNER, T. PETÄJÄ, H. TANIMOTO, J. GAMBLE, J. DIBB, M. MELAMED, N. JOHNSON, M. FIDEL, V.-P. TYNKKYNNEN, A. BAKLANOV, S. ECKHARDT, S. MONKS, J. BROWSE et H. BOZEM (mai 2016). « Arctic air pollution : Challenges and opportunities for the next decade ». In : *Elementa : Science of the Anthropocene* 4, p. 000104.

- ARNOLD, S. R., L. K. EMMONS, S. MONKS, K. S. LAW, D. RIDLEY, S. TURQUETY, S. TILMES, J. L. THOMAS, I. BOUARAR, J. FLEMMING et al. (2015). « Biomass burning influence on high-latitude tropospheric ozone and reactive nitrogen in summer 2008 : a multi-model analysis based on POLMIP simulations ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 15, p. 6047-6068.
- BAKER, A. R., M. KANAKIDOU, K. E. ALTIERI, N. DASKALAKIS, G. S. OKIN, S. MYRIOKEFALITAKIS, F. DENTENER, M. UEMATSU, M. M. SARIN, R. A. DUCE et al. (2017). « Observation-and model-based estimates of particulate dry nitrogen deposition to the oceans ». In : *Atmospheric chemistry and physics* 17.13, p. 8189-8210.
- BAUDUIN, S., L. CLARISSE, C. CLERBAUX, D. HURTMAINS et P.-F. COHEUR (2014). « IASI observations of sulfur dioxide (SO₂) in the boundary layer of Norilsk ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 119.7, p. 4253-4263.
- BERG, L. K., M. SHRIVASTAVA, R. C. EASTER, J. D. FAST, E. G. CHAPMAN, Y. LIU et R. FERRARE (2015). « A new WRF-Chem treatment for studying regional-scale impacts of cloud processes on aerosol and trace gases in parameterized cumuli. » In : *Geoscientific Model Development* 8.2.
- BIGG, E. (1980). « Comparison of aerosol at four baseline atmospheric monitoring stations ». In : *Journal of Applied Meteorology* 19.5, p. 521-533.
- BLANCHET, J.-P. et E. GIRARD (1994). « Arctic 'greenhouse effect' ». In : *Nature* 371.6496, p. 383-383.
- BOND, T. C., S. J. DOHERTY, D. FAHEY, P. FORSTER, T. BERNTSEN, B. DEANGELO, M. FLANNER, S. GHAN, B. KÄRCHER, D. KOCH et al. (2013). « Bounding the role of black carbon in the climate system : A scientific assessment ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 118.11, p. 5380-5552.
- BOND, T. C., D. G. STREETS, K. F. YARBER, S. M. NELSON, J.-H. WOO et Z. KLIMONT (2004). « A technology-based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 109.D14.
- BREIDER, T. J., L. J. MICKLEY, D. J. JACOB, Q. WANG, J. A. FISHER, R. Y.-W. CHANG et B. ALEXANDER (2014). « Annual distributions and sources of Arctic aerosol components, aerosol optical depth, and aerosol absorption ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 119.7, p. 4107-4124.
- BROCK, C. A., J. COZIC, R. BAHREINI, K. D. FROYD, A. M. MIDDLEBROOK, A. MCCOMISKEY, J. BRIOUDE, O. R. COOPER, A. STOHL, K. C. AIKIN, J. A. de GOUW, D. W. FAHEY, R. A. FERRARE, R.-S. GAO, W. GORE, J. S. HOLLOWAY, G. HÜBLER, A. JEFFERSON, D. A. LACK, S. LANCE, R. H. MOORE, D. M. MURPHY, A. NENES, P. C. NOVELLI, J. B. NOWAK, J. A. OGREN, J. PEISCHL, R. B. PIERCE, P. PILEWSKIE, P. K. QUINN, T. B. RYERSON, K. S. SCHMIDT, J. P. SCHWARZ, H. SODEMANN, J. R. SPACKMAN, H. STARK, D. S. THOMSON, T. THORNBERRY, P. VERES, L. A. WATTS, C. WARNEKE et A. G. WOLLNY (2011). « Characteristics, sources, and transport of aerosols measured in spring 2008 during the aerosol, radiation, and cloud processes affecting Arctic Climate (ARCPAC) Project ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 11.6, p. 2423-2453.
- BROMWICH, D. H., K. M. HINES et L.-S. BAI (2009). « Development and testing of polar weather research and forecasting model : 2. Arctic Ocean ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 114.D8.
- BROMWICH, D. H., F. O. OTIENO, K. M. HINES, K. W. MANNING et E. SHILO (2013). « Comprehensive evaluation of polar weather research and forecasting model performance in the Antarctic ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 118.2, p. 274-292.
- BROOKS, S. B., T. L. CRAWFORD et W. C. OECHEL (1997). « Measurement of carbon dioxide emissions plumes from Prudhoe Bay, Alaska oil fields ». In : *Journal of Atmospheric Chemistry* 27.2, p. 197-207.
- BROWSE, J., K. CARSLAW, S. ARNOLD, K. PRINGLE et O. BOUCHER (2012). « The scavenging processes controlling the seasonal cycle in Arctic sulphate and black carbon aerosol ». In : *Atmos. Chem. Phys.* 12, p. 6775-6798.
- CARTER, W. P. L. (2000). *Documentation of the SAPRC-99 chemical mechanism for VOC reactivity assessment. Final Report to California Air Resources Board Contract 92-329 and Contract 95-308*, rapp. tech. California : Air Pollution Research Center, College of Engineering Center for Environmental Research et Technology, University of California Riverside.
- CASTELLANI, G., C. LÜPKES, S. HENDRICKS et R. GERDES (2014). « Variability of Arctic sea-ice topography and its impact on the atmospheric surface drag ». In : *Journal of Geophysical Research : Oceans* 119.10, p. 6743-6762.
- CHAPMAN, E. G., W. GUSTAFSON JR, R. C. EASTER, J. C. BARNARD, S. J. GHAN, M. S. PEKOUR et J. D. FAST (2009). « Coupling aerosol-cloud-radiative processes in the WRF-Chem model : Investigating the radiative impact of elevated point sources ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 9.3, p. 945-964.
- CHARLSON, R. J., S. E. SCHWARTZ, J. M. HALES, R. D. CESS, J. A. COAKLEY, J. E. HANSEN et D. J. HOFMANN (1992). « Climate Forcing by Anthropogenic Aerosols ». In : *Science* 255.5043, p. 423-430.
- CHAZETTE, P., M. BOCQUET, P. ROYER, V. WINIAREK, J.-C. RAUT, P. LABAZUY, M. GOUIER, M. LARDIER et J.-P. CARIOU (2012). « Eyjafjallajökull ash concentrations derived from both lidar and modeling ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 117.D20.

- CHAZETTE, P., C. FLAMANT, J.-C. RAUT, J. TOTEMS et X. SHANG (2016a). « Tropical moisture enriched storm tracks over the Mediterranean and their link with intense rainfall in the Cevennes-Vivarais area during HyMeX ». In : *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 142, p. 320-334.
- CHAZETTE, P., C. FLAMANT, X. SHANG, J. TOTEMS, J.-C. RAUT, A. DOERENBECHER, V. DUCROCQ, N. FOURRIÉ, O. BOCK et S. CLOCHÉ (2016b). « A multi-instrument and multi-model assessment of atmospheric moisture variability over the western Mediterranean during HyMeX ». In : *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 142, p. 7-22.
- CHAZETTE, P., J.-C. RAUT, F. DULAC, S. BERTHIER, S.-W. KIM, P. ROYER, J. SANAK, S. LOAËC et H. GRIGAUT-DESBROSSES (2010). « Simultaneous observations of lower tropospheric continental aerosols with a ground-based, an airborne, and the spaceborne CALIOP lidar system ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 115.D4.
- CHAZETTE, P., J.-C. RAUT et J. TOTEMS (2018). « Springtime aerosol load as observed from ground-based and airborne lidars over northern Norway ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 18.17, p. 13075-13095.
- CHERNOFF, D. I. et A. K. BERTRAM (2010). « Effects of sulfate coatings on the ice nucleation properties of a biological ice nucleus and several types of minerals ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 115.D20.
- CHIN, M., D. J. JACOB, G. M. GARDNER, M. S. FOREMAN-FOWLER, P. A. SPIRO et D. L. SAVOIE (1996). « A global three-dimensional model of tropospheric sulfate ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 101.D13, p. 18667-18690.
- CORBETT, J. J., D. A. LACK, J. J. WINEBRAKE, S. HARDER, J. A. SILBERMAN et M. GOLD (2010). « Arctic shipping emissions inventories and future scenarios ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 10.19, p. 9689-9704.
- CURRY, J. A. et G. HERMAN (1985). « Infrared radiative properties of summertime Arctic stratus clouds ». In : *Journal of climate and applied meteorology* 24.6, p. 525-538.
- CURRY, J. A., J. L. SCHRAMM, W. B. ROSSOW et D. RANDALL (1996). « Overview of Arctic cloud and radiation characteristics ». In : *Journal of Climate* 9.8, p. 1731-1764.
- DAHLKÖTTER, F., M. GYSEL, D. SAUER, A. MINIKIN, R. BAUMANN, P. SEIFERT, A. ANSMANN, M. FROMM, C. VOIGT et B. WEINZIERL (2014). « The Pagami Creek smoke plume after long-range transport to the upper troposphere over Europe - aerosol properties and black carbon mixing state ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 14.12, p. 6111-6137.
- DALSØREN, S. B., B. H. SAMSET, G. MYHRE, J. J. CORBETT, R. MINJARES, D. LACK et J. S. FUGLESTVEDT (2013). « Environmental impacts of shipping in 2030 with a particular focus on the Arctic region ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 13.4, p. 1941-1955.
- DALSØREN, S. B., Ø. ENDRESEN, I. S. A. ISAKSEN, G. GRAVIR et E. SØRGÅRD (2007). « Environmental impacts of the expected increase in sea transportation, with a particular focus on oil and gas scenarios for Norway and northwest Russia ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 112.D2. D02310.
- DASKALAKIS, N., J.-C. RAUT, K. S. LAW, T. ONISHI et L. MARELLE (2020). « Impacts of shipping emissions in the Barents Sea in atmospheric composition and deposition ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*.
- DE BOER, G., W. CHAPMAN, J. E. KAY, B. MEDEIROS, M. D. SHUPE, S. VAVRUS et J. WALSH (2012). « A characterization of the present-day Arctic atmosphere in CCSM4 ». In : *Journal of Climate* 25.8, p. 2676-2695.
- DI BIAGIO, C., L. DOPPLER, C. GAIMOZ, N. GRAND, G. ANCELLET, J.-C. RAUT, M. BEEKMANN, A. BORBON, K. SARTELET, J.-L. ATTÍE, F. RAVETTA et P. FORMENTI (2015). « Continental pollution in the western Mediterranean basin : vertical profiles of aerosol and trace gases measured over the sea during TRAQA 2012 and SAF-MED 2013 ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 15.16, p. 9611-9630.
- EASTER, R. C., S. J. GHAN, Y. ZHANG, R. D. SAYLOR, E. G. CHAPMAN, N. S. LAULAINEN, H. ABDUL-RAZZAK, L. R. LEUNG, X. BIAN et R. A. ZAVERI (2004). « MIRAGE : Model description and evaluation of aerosols and trace gases ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 109.D20. D20210.
- EASTWOOD, M. L., S. CREMEL, C. GEHRKE, E. GIRARD et A. K. BERTRAM (2008). « Ice nucleation on mineral dust particles : Onset conditions, nucleation rates and contact angles ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 113.D22.
- EASTWOOD, M. L., S. CREMEL, M. WHEELER, B. J. MURRAY, E. GIRARD et A. K. BERTRAM (2009). « Effects of sulfuric acid and ammonium sulfate coatings on the ice nucleation properties of kaolinite particles ». In : *Geophysical Research Letters* 36.2.
- ECKHARDT, S., B. QUENNEHEN, D. J. L. OLIVIÉ, T. K. BERNTSEN, R. CHERIAN, J. H. CHRISTENSEN, W. COLLINS, S. CREPINSEK, N. DASKALAKIS, M. FLANNER, A. HERBER, C. HEYES, Ø. HODNEBROG, L. HUANG, M. KANAKIDOU, Z. KLIMONT, J. LANGNER, K. S. LAW, M. T. LUND, R. MAHMOOD, A. MASSLING, S. MYRIOKEFALITAKIS, I. E. NIELSEN, J. K. NØJGAARD, J. QUAAS, P. K. QUINN, J.-C. RAUT, S. T. RUMBOLD, M. SCHULZ, S. SHARMA, R. B. SKEIE, H. SKOV, T. UTTAL, K. VON SALZEN et A. STOHL (2015). « Current model capabilities for simulating

- black carbon and sulfate concentrations in the Arctic atmosphere : a multi-model evaluation using a comprehensive measurement data set ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 15.16, p. 9413-9433.
- ELEFThERiADiS, K., S. VRATOLiS et S. NYEKi (2009). « Aerosol black carbon in the European Arctic : measurements at Zeppelin station, Ny-Ålesund, Svalbard from 1998–2007 ». In : *Geophysical Research Letters* 36.2.
- ELIAS, T., M. HAEFFELIN, P. DROBINSKI, L. GOMES, J. RANGOGNIO, T. BERGOT, P. CHAZETTE, J.-C. RAUT et M. COLOMB (2009). « Particulate contribution to extinction of visible radiation : pollution, haze, and fog ». In : *Atmospheric Research* 92.4, p. 443-454.
- EMMONS, L., S. ARNOLD, S. MONKS, V. HUIJNEN, S. TILMES, K. S. LAW, J. L. THOMAS, J.-C. RAUT, I. BOUARAR, S. TURQUETY, Y. LONG, B. DUNCAN, S. STEENROD, S. STRODE, J. FLEMMING, J. MAO, J. LANGNER, A. M. THOMPSON, D. TARASICK, E. C. APEL, D. R. BLAKE, R. C. COHEN, J. DIBB, G. S. DISKIN, A. FRIED, S. R. HALL, L. G. HUEY, A. J. WEINHEIMER, A. WISTHALER, T. MIKOVINY, J. NOWAK, J. PEISCHL, J. M. ROBERTS, T. RYERSON, C. WARNEKE et D. HELMIG (2015). « The POLARCAT Model Intercomparison Project (POLMIP) : overview and evaluation with observations ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 15.12, p. 6721-6744.
- EMMONS, L., S. WALTERS, P. HESS, J.-F. LAMARQUE, G. PFISTER, D. FILLMORE, C. GRANIER, A. GUENTHER, D. KINNISSON, T. LAEPPLÉ et al. (2010). « Description and evaluation of the Model for Ozone and Related chemical Tracers, version 4 (MOZART-4) ». In : *Geoscientific Model Development* 3.1, p. 43-67.
- ENGVAL, A.-C., R. KREJCI, J. STRÖM, R. TREFFEISEN, R. SCHEELE, O. HERMANSEN et J. PAATERO (2008). « Changes in aerosol properties during spring-summer period in the Arctic troposphere ». In : *Atmospheric chemistry and physics* 8.3, p. 445-462.
- FISHER, J. A., D. J. JACOB, M. T. PURDY, M. KOPACZ, P. LE SAGER, C. CAROUGE, C. D. HOLMES, R. M. YANTOSCA, R. L. BATCHELOR, K. STRONG, G. S. DISKIN, H. E. FUELBERG, J. S. HOLLOWAY, E. J. HYER, W. W. McMILLAN, J. WARNER, D. G. STREETS, Q. ZHANG, Y. WANG et S. WU (2010). « Source attribution and interannual variability of Arctic pollution in spring constrained by aircraft (ARCTAS, ARCPAC) and satellite (AIRS) observations of carbon monoxide ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 10.3, p. 977-996.
- FISHER, J. A., D. J. JACOB, Q. WANG, R. BAHREINI, C. C. CAROUGE, M. J. CUBISON, J. E. DIBB, T. DIEHL, J. L. JIMENEZ, E. M. LEIBENSPERGER, Z. LU, M. B. MEINDERS, H. O. PYE, P. K. QUINN, S. SHARMA, D. G. STREETS, A. van DONKELAAR et R. M. YANTOSCA (2011). « Sources, distribution, and acidity of sulfate-ammonium aerosol in the Arctic in winter-spring ». In : *Atmospheric Environment* 45.39, p. 7301-7318.
- FLANNER, M. G., C. S. ZENDER, J. T. RANDERSON et P. J. RASCH (2007). « Present-day climate forcing and response from black carbon in snow ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 112.D11.
- FORSIUS, M., M. POSCH, J. AHERNE, G. J. REINDS, J. CHRISTENSEN et L. HOLE (2010). « Assessing the impacts of long-range sulfur and nitrogen deposition on arctic and sub-arctic ecosystems ». In : *Ambio* 39.2, p. 136-147.
- FROMM, M., R. BEVILACQUA, R. SERVIRANCKX, J. ROSEN, J. P. THAYER, J. HERMAN et D. LARKO (2005). « Pyrocumulonimbus injection of smoke to the stratosphere : Observations and impact of a super blowup in northwestern Canada on 3–4 August 1998 ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 110.D8.
- GADHAVI, H., K. RENUKA, V. RAVI KIRAN, A. JAYARAMAN, A. STOHL, Z. KLIMONT et G. BEIG (2015). « Evaluation of black carbon emission inventories using a Lagrangian dispersion model—a case study over southern India ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 15.3, p. 1447-1461.
- GARRETT, T. J. et C. ZHAO (2006). « Increased Arctic cloud longwave emissivity associated with pollution from mid-latitudes ». In : *Nature* 440.7085, p. 787-789.
- GARRETT, T. J., L. F. RADKE et P. V. HOBBS (2002). « Aerosol effects on cloud emissivity and surface longwave heating in the Arctic ». In : *Journal of the Atmospheric Sciences* 59.3, p. 769-778.
- GARRETT, T., C. ZHAO, X. DONG, G. MACE et P. HOBBS (2004). « Effects of varying aerosol regimes on low-level Arctic stratus ». In : *Geophysical Research Letters* 31.17.
- GAUTIER, D. L., K. J. BIRD, R. R. CHARPENTIER, A. GRANTZ, D. W. HOUSEKNECHT, T. R. KLETT, T. E. MOORE, J. K. PITMAN, C. J. SCHENK, J. H. SCHUENEMEYER, K. SØRENSEN, M. E. TENNYSON, Z. C. VALIN et C. J. WANDREY (2009). « Assessment of Undiscovered Oil and Gas in the Arctic ». In : *Science* 324.5931, p. 1175-1179.
- GIRARD, E. et N. S. ASL (2014). « Relative importance of acid coating on ice nuclei in the deposition and contact modes for wintertime Arctic clouds and radiation ». In : *Meteorology and Atmospheric Physics* 123.1-2, p. 81-92.
- GIRARD, E., J.-P. BLANCHET et Y. DUBOIS (2005). « Effects of arctic sulphuric acid aerosols on wintertime low-level atmospheric ice crystals, humidity and temperature at Alert, Nunavut ». In : *Atmospheric Research* 73.1-2, p. 131-148.
- GIRARD, E., G. DUEYMES, P. DU et A. K. BERTRAM (2013). « Assessment of the effects of acid-coated ice nuclei on the Arctic cloud microstructure, atmospheric dehydration, radiation and temperature during winter ». In : *International journal of climatology* 33.3, p. 599-614.

- GRANIER, C., B. BESSAGNET, T. BOND, A. D'ANGIOLA, H. D. van DER GON, G. J. FROST, A. HEIL, J. W. KAISER, S. KINNE, Z. KLIMONT, S. KLOSTER, J.-F. LAMARQUE, C. LIOUSSE, T. MASUI, F. MELEUX, A. MIEVILLE, T. OHARA, J.-C. RAUT, K. RIAHI, M. SCHULTZ, S. J. SMITH, A. THOMPSON, J. van AARDENNE, G. R. van der WERF et D. P. van VUUREN (2011). « Evolution of anthropogenic and biomass burning emissions of air pollutants at global and regional scales during the 1980–2010 period ». In : *Climatic Change* 109.1-2, p. 163.
- GREENAWAY, K. (1950). « Experiences with Arctic flying weather ». In : *Royal Meteorological Society Canadian Branch* (Nov. 30, 1950), Toronto, Ontario.
- GRELL, G. A., S. E. PECKHAM, R. SCHMITZ, S. A. McKEEN, G. FROST, W. C. SKAMAROCK et B. EDER (2005). « Fully coupled "online" chemistry within the WRF model ». In : *Atmospheric Environment* 39.37, p. 6957-6975.
- GRENIER, P. et J.-P. BLANCHET (2010). « Investigation of the sulphate-induced freezing inhibition effect from CloudSat and CALIPSO measurements ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 115.D22.
- GUSTAFSON, W. I., E. G. CHAPMAN, S. J. GHAN, R. C. EASTER et J. D. FAST (2007). « Impact on modeled cloud characteristics due to simplified treatment of uniform cloud condensation nuclei during NEAQS 2004 ». In : *Geophysical Research Letters* 34.19. L19809.
- HAEFFELIN, M., T. BERGOT, T. ELIAS, R. TARDIF, D. CARRER, P. CHAZETTE, M. COLOMB, P. DROBINSKI, E. DUPONT, J.-C. DUPONT, L. GOMES, L. MUSSON-GENON, C. PIETRAS, A. PLANA-FATTORI, A. PROTAT, J. RANGOGNIO, J.-C. RAUT, S. RÉMY, D. RICHARD, J. SCIARE et X. ZHANG (2010). « PARISFOG : shedding new light on fog physical processes ». In : *Bulletin of the American Meteorological Society* 91.6, p. 767-783.
- HANSEN, J., M. SATO et R. RUEDY (1997). « Radiative forcing and climate response ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 102.D6, p. 6831-6864.
- HASSELLÖV, I.-M., D. R. TURNER, A. LAUER et J. J. CORBETT (2013). « Shipping contributes to ocean acidification ». In : *Geophysical Research Letters* 40.11, p. 2731-2736.
- HAYWOOD, J. M. et K. P. SHINE (1995). « The effect of anthropogenic sulfate and soot aerosol on the clear sky planetary radiation budget ». In : *Geophysical Research Letters* 22.5, p. 603-606.
- HINES, K. M. et D. H. BROMWICH (2008). « Development and testing of Polar Weather Research and Forecasting (WRF) model. Part I : Greenland ice sheet meteorology ». In : *Monthly Weather Review* 136.6, p. 1971-1989.
- (2017). « Simulation of Late Summer Arctic Clouds during ASCOS with Polar WRF ». In : *Monthly Weather Review* 145.2, p. 521-541.
- HINES, K. M., D. H. BROMWICH, L.-S. BAI, M. BARLAGE et A. G. SLATER (2011). « Development and testing of Polar WRF. Part III : Arctic land ». In : *Journal of Climate* 24.1, p. 26-48.
- HIRDMAN, D., H. SODEMANN, S. ECKHARDT, J. F. BURKHART, A. JEFFERSON, T. MEFFORD, P. K. QUINN, S. SHARMA, J. STRÖM et A. STOHL (2010). « Source identification of short-lived air pollutants in the Arctic using statistical analysis of measurement data and particle dispersion model output ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 10.2, p. 669-693.
- HODNEBROG, Ø., G. MYHRE et B. H. SAMSET (2014). « How shorter black carbon lifetime alters its climate effect ». In : *Nature communications* 5, p. 5065.
- HOLTSLAG, A. A. M., G. SVENSSON, P. BAAS, S. BASU, B. BEARE, A. C. M. BELJAARS, F. C. BOSVELD, J. CUXART, J. LINDVALL, G. J. STEENEVELD, M. TJERNSTRÖM et B. J. H. V. D. WIEL (2013). « Stable Atmospheric Boundary Layers and Diurnal Cycles : Challenges for Weather and Climate Models ». In : *Bulletin of the American Meteorological Society* 94.11, p. 1691-1706.
- HOOSE, C. et O. MÖHLER (2012). « Heterogeneous ice nucleation on atmospheric aerosols : a review of results from laboratory experiments ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 12.20, p. 9817-9854.
- HU, S. et A. V. FEDOROV (2017). « The extreme El Niño of 2015–2016 and the end of global warming hiatus ». In : *Geophysical Research Letters* 44.8, p. 3816-3824.
- INOUE, J., J. LIU, J. O. PINTO et J. A. CURRY (2006). « Intercomparison of Arctic regional climate models : Modeling clouds and radiation for SHEBA in May 1998 ». In : *Journal of Climate* 19.17, p. 4167-4178.
- INTRIERI, J. M., C. W. FAIRALL, M. D. SHUPE, P. O. G. PERSSON, E. L. ANDREAS, P. S. GUEST et R. E. MORITZ (2002). « An annual cycle of Arctic surface cloud forcing at SHEBA ». In : *Journal of Geophysical Research : Oceans* 107.C10. 8039, SHE 13-1-SHE 13-14.
- IPCC (2013). *Climate Change 2013 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Sous la dir. de T. STOCKER, D. QIN, G.-K. PLATTNER, M. TIGNOR, S. ALLEN, J. BOSCHUNG, A. NAUELS, Y. XIA, V. BEX et P. MIDGLEY. Cambridge, United Kingdom et New York, NY, USA : Cambridge University Press, p. 1535.
- IVERSEN, T. (1996). « Atmospheric transport pathways for the Arctic ». In : *Chemical Exchange between the Atmosphere and Polar Snow*. Springer, p. 71-92.
- JACOB, D. J., J. CRAWFORD, H. MARING, A. CLARKE, J. E. DIBB, L. EMMONS, R. FERRARE, C. HOSTETLER, P. RUSSELL, H. SINGH et al. (2010). « The Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and

- Satellites (ARCTAS) mission : design, execution, and first results ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 10.11, p. 5191-5212.
- JACOBSON, M. Z., R. P. TURCO, E. J. JENSEN et O. B. TOON (1994). « Modeling coagulation among particles of different composition and size ». In : *Atmospheric Environment* 28.7, p. 1327-1338.
- JAFFE, D., R. HONRATH, D. FURNESS, T. CONWAY, E. DLUGOKENCKY et L. STEELE (1995). « A determination of the CH₄, NO_x and CO₂ emissions from the Prudhoe Bay, Alaska oil development ». In : *Journal of Atmospheric Chemistry* 20.3, p. 213-227.
- JALKANEN, J.-P., L. JOHANSSON, J. KUKKONEN, A. BRINK, J. KALLI et T. STIPA (2012). « Extension of an assessment model of ship traffic exhaust emissions for particulate matter and carbon monoxide ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 12.5, p. 2641-2659.
- JIAO, C., M. FLANNER, Y. BALKANSKI, S. BAUER, N. BELLOUIN, T. BERNTSEN, H. BIAN, K. CARSLAW, M. CHIN, N. DE LUCA et al. (2014). « An AeroCom assessment of black carbon in Arctic snow and sea ice ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 14.5, p. 2399-2417.
- JIAO, C. et M. FLANNER (2016). « Changing black carbon transport to the Arctic from present day to the end of 21st century ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*. 2015JD023964.
- JONSON, J., J. JALKANEN, L. JOHANSSON, M. GAUSS et H. DENIER VAN DER GON (2015). « Model calculations of the effects of present and future emissions of air pollutants from shipping in the Baltic Sea and the North Sea ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 15.2, p. 783-798.
- JOUAN, C., E. GIRARD, J. PELON, I. GULTEPE, J. DELANOË et J.-P. BLANCHET (déc. 2012). « Characterization of Arctic ice cloud properties observed during ISDAC ». In : *Journal of Geophysical Research (Atmospheres)* 117, D23207, p. D23207.
- JOUAN, C., J. PELON, E. GIRARD, G. ANCELLET, J. P. BLANCHET et J. DELANOË (2014). « On the relationship between Arctic ice clouds and polluted air masses over the North Slope of Alaska in April 2008 ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 14.3, p. 1205-1224.
- KARION, A., C. SWEENEY, G. PÉTRON, G. FROST, R. MICHAEL HARDESTY, J. KOFLER, B. R. MILLER, T. NEWBERGER, S. WOLTER, R. BANTA et al. (2013). « Methane emissions estimate from airborne measurements over a western United States natural gas field ». In : *Geophysical Research Letters* 40.16, p. 4393-4397.
- KARLSSON, J. et G. SVENSSON (2011). « The simulation of Arctic clouds and their influence on the winter surface temperature in present-day climate in the CMIP3 multi-model dataset ». In : *Climate dynamics* 36.3-4, p. 623-635.
- KAY, J. E. et A. GETTELMAN (2009). « Cloud influence on and response to seasonal Arctic sea ice loss ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 114.D18, D18204, n/a-n/a.
- KEITA, S. A., E. GIRARD, J.-C. RAUT, M. LERICHE, J.-P. BLANCHET, J. PELON, T. ONISHI et A. CIRISAN (2020). « A new parameterization of ice heterogeneous nucleation coupled to aerosol chemistry in WRF-Chem model version 3.5.1 : evaluation through the ISDAC measurements ». In : *Geoscientific Model Development Discussions* 2020, p. 1-35.
- KEITA, S. A., E. GIRARD, J.-C. RAUT, J. PELON, J.-P. BLANCHET, O. LEMOINE et T. ONISHI (août 2019). « Simulating Arctic Ice Clouds during Spring Using an Advanced Ice Cloud Microphysics in the WRF Model ». In : *Atmosphere* 10.8, art. 433 (29 p.)
- KIM, S.-W., S. BERTHIER, J.-C. RAUT, P. CHAZETTE, F. DULAC et S.-C. YOON (2008). « Validation of aerosol and cloud layer structures from the space-borne lidar CALIOP using a ground-based lidar in Seoul, Korea ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 8.13, p. 3705-3720.
- KIM, Y., K. SARTELET, J.-C. RAUT et P. CHAZETTE (2013). « Evaluation of the Weather Research and Forecast/urban model over Greater Paris ». In : *Boundary-layer meteorology* 149.1, p. 105-132.
- (2015). « Influence of an urban canopy model and PBL schemes on vertical mixing for air quality modeling over Greater Paris ». In : *Atmospheric Environment* 107, p. 289-306.
- KING, M. D., Y. J. KAUFMAN, W. P. MENZEL et D. TANRE (1992). « Remote sensing of cloud, aerosol, and water vapor properties from the Moderate Resolution Imaging Spectrometer (MODIS) ». In : *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing* 30.1, p. 2-27.
- KLIMONT, Z., S. J. SMITH et J. COFALA (2013). « The last decade of global anthropogenic sulfur dioxide : 2000–2011 emissions ». In : *Environmental Research Letters* 8.1, p. 014003.
- KLIMONT, Z., K. KUPIAINEN, C. HEYES, P. PUROHIT, J. COFALA, P. RAFAJ, J. BORKEN-KLEEFELD et W. SCHÖPP (2017). « Global anthropogenic emissions of particulate matter including black carbon ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 17.14, p. 8681-8723.
- KLONECKI, A., P. HESS, L. EMMONS, L. SMITH, J. ORLANDO et D. BLAKE (2003). « Seasonal changes in the transport of pollutants into the Arctic troposphere-model study ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 108.D4, 8367.

- KOCH, D., M. SCHULZ, S. KINNE, C. MCNAUGHTON, J. SPACKMAN, Y. BALKANSKI, S. BAUER, T. BERNTSEN, T. C. BOND, O. BOUCHER et al. (2009). « Evaluation of black carbon estimations in global aerosol models ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 9.22, p. 9001-9026.
- KOCHTUBAJDA, B., B. JULIAN, M. FLANNIGAN, B. MORROW et M. GREENHOUGH (2017). « The extreme 2016 wildfire in Fort McMurray, Alberta, Canada [in "State of the Climate in 2016"] ». In : *Bull. Amer. Meteor. Soc* 98.8, S176-S177.
- KONDO, Y., H. MATSUI, N. MOTEKI, L. SAHU, N. TAKEGAWA, M. KAJINO, Y. ZHAO, M. J. CUBISON, J. L. JIMENEZ, S. VAY, G. S. DISKIN, B. ANDERSON, A. WISTHALER, T. MIKOVINY, H. E. FUELBERG, D. R. BLAKE, G. HUEY, A. J. WEINHEIMER, D. J. KNAPP et W. H. BRUNE (2011). « Emissions of black carbon, organic, and inorganic aerosols from biomass burning in North America and Asia in 2008 ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 116.D8. D08204.
- LANDIS, M. S., E. S. EDGERTON, E. M. WHITE, G. R. WENTWORTH, A. P. SULLIVAN et A. M. DILLNER (2018). « The impact of the 2016 Fort McMurray Horse River wildfire on ambient air pollution levels in the Athabasca Oil Sands Region, Alberta, Canada ». In : *Science of the Total Environment* 618, p. 1665-1676.
- LAW, K. S., A. STOHL, P. K. QUINN, C. A. BROCK, J. F. BURKHART, J.-D. PARIS, G. ANCELLET, H. B. SINGH, A. ROIGER, H. SCHLAGER, J. DIBB, D. J. JACOB, S. R. ARNOLD, J. PELON et J. L. THOMAS (2014). « Arctic Air Pollution : New Insights from POLARCAT-IPY ». In : *Bulletin of the American Meteorological Society* 95.12, p. 1873-1895.
- LAW, K. S. et A. STOHL (2007). « Arctic Air Pollution : Origins and Impacts ». In : *Science* 315.5818, p. 1537-1540.
- LAW, K. S., A. ROIGER, J. L. THOMAS, L. MARELLE, J.-C. RAUT, S. DALSRØREN, J. FUGLESTVEDT, P. TUCCELLA, B. WEINZIERL et H. SCHLAGER (2017). « Local Arctic air pollution : Sources and impacts ». In : *Ambio* 46.3, p. 453-463.
- LECOMTE, O., T. FICHEFET, F. MASSONNET et M. VANCOPPENOLLE (2014). « Benefits from representing snow properties and related processes in coupled ocean-sea ice models ». In : *Ocean Modelling* 87, p. 81-85.
- LEE, Y., J.-F. LAMARQUE, M. FLANNER, C. JIAO, D. SHINDELL, T. BERNTSEN, M. BISIAUX, J. CAO, W. COLLINS, M. CURRAN et al. (2013). « Evaluation of preindustrial to present-day black carbon and its albedo forcing from Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP) ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 13.5, p. 2607-2634.
- LEMAITRE, C., C. FLAMANT, J. CUESTA, J.-C. RAUT, P. CHAZETTE, P. FORMENTI et J. PELON (2010). « Radiative heating rates profiles associated with a springtime case of Bodélé and Sudan dust transport over West Africa ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 10.17, p. 8131-8150.
- LI, S.-M., L. BARRIE, R. TALBOT, R. HARRISS, C. I. DAVIDSON et J.-L. JAFFREZO (1993). « Seasonal and geographic variations of methanesulfonic acid in the Arctic troposphere ». In : *Atmospheric Environment. Part A. General Topics* 27.17-18, p. 3011-3024.
- LINDSAY, R., M. WENNAHAN, A. SCHWEIGER et J. ZHANG (2014). « Evaluation of Seven Different Atmospheric Reanalysis Products in the Arctic ». In : *Journal of Climate* 27.7, p. 2588-2606.
- LIU, F., Q. ZHANG, D. TONG, B. ZHENG, M. LI, H. HUO et K. HE (2015). « High-resolution inventory of technologies, activities, and emissions of coal-fired power plants in China from 1990 to 2010 ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 15.23, p. 13299-13317.
- LIU, M. et J. KRONBAK (2010). « The potential economic viability of using the Northern Sea Route (NSR) as an alternative route between Asia and Europe ». In : *Journal of Transport Geography* 18.3. Tourism and climate change, p. 434-444.
- LOHMANN, U. et K. DIEHL (2006). « Sensitivity studies of the importance of dust ice nuclei for the indirect aerosol effect on stratiform mixed-phase clouds ». In : *Journal of the Atmospheric Sciences* 63.3, p. 968-982.
- LOHMANN, U. et C. HOOSE (2009). « Sensitivity studies of different aerosol indirect effects in mixed-phase clouds ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions* 9.4, p. 15045-15081.
- LUND, M. et T. BERNTSEN (2012). « Parameterization of black carbon aging in the OsloCTM2 and implications for regional transport to the Arctic ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 12.15, p. 6999-7014.
- LÜPKES, C., V. M. GRYANIK, J. HARTMANN et E. L. ANDREAS (2012). « A parametrization, based on sea ice morphology, of the neutral atmospheric drag coefficients for weather prediction and climate models ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 117.D13. D13112.
- LÜPKES, C., V. M. GRYANIK, A. RÖSEL, G. BIRNBAUM et L. KALESCHKE (2013). « Effect of sea ice morphology during Arctic summer on atmospheric drag coefficients used in climate models ». In : *Geophysical research letters* 40.2, p. 446-451.
- MARELLE, L., J.-C. RAUT, K. S. LAW, L. K. BERG, J. D. FAST, R. C. EASTER, M. SHRIVASTAVA et J. L. THOMAS (2017). « Improvements to the WRF-Chem 3.5.1 model for quasi-hemispheric simulations of aerosols and ozone in the Arctic ». In : *Geoscientific Model Development* 10.10, p. 3661-3677.

- MARELLE, L., J.-C. RAUT, K. S. LAW et O. DUCLAUX (2018). « Current and Future Arctic Aerosols and Ozone From Remote Emissions and Emerging Local Sources—Modeled Source Contributions and Radiative Effects ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 123.22, p. 12-942.
- MARELLE, L., J.-C. RAUT, J. L. THOMAS, K. S. LAW, B. QUENNEHEN, G. ANCELLET, J. PELON, A. SCHWARZENBOECK et J. D. FAST (2015). « Transport of anthropogenic and biomass burning aerosols from Europe to the Arctic during spring 2008 ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 15.7, p. 3831-3850.
- MARELLE, L., J. L. THOMAS, J.-C. RAUT, K. S. LAW, J.-P. JALKANEN, L. JOHANSSON, A. ROIGER, H. SCHLAGER, J. KIM, A. REITER et B. WEINZIERL (2016). « Air quality and radiative impacts of Arctic shipping emissions in the summertime in northern Norway : from the local to the regional scale ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 16.4, p. 2359-2379.
- McMEEKING, G., M. BART, P. CHAZETTE, J. M. HAYWOOD, J. HOPKINS, J. McQUAID, W. MORGAN, J.-C. RAUT, C. RYDER, N. SAVAGE, K. TURNBULL et H. COE (2012). « Airborne measurements of trace gases and aerosols over the London metropolitan region ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 12.11, p. 5163-5187.
- MILBRANDT, J. A. et M. K. YAU (2005). « A Multimoment Bulk Microphysics Parameterization. Part II : A Proposed Three-Moment Closure and Scheme Description ». In : *Journal of the Atmospheric Sciences* 62.9, p. 3065-3081.
- MINNIS, P., K.-N. LIOU et Y. TAKANO (1993). « Inference of cirrus cloud properties using satellite-observed visible and infrared radiances. Part I : Parameterization of radiance fields ». In : *Journal of the atmospheric sciences* 50.9, p. 1279-1304.
- MIOCHE, G., O. JOURDAN, M. CECCALDI et J. DELANOË (2015). « Variability of mixed-phase clouds in the Arctic with a focus on the Svalbard region : a study based on spaceborne active remote sensing ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 15.5, p. 2445-2461.
- MITCHELL, J. (1957). « Visual range in the polar regions with particular reference to the Alaskan Arctic ». In : *Journal of Atmospheric and Terrestrial Physics* 17, p. 195-211.
- MONKS, S., S. ARNOLD, L. EMMONS, K. S. LAW, S. TURQUETY, B. DUNCAN, J. FLEMMING, V. HUIJNEN, S. TILMES, J. LANGNER, J. MAO, Y. LONG, J. L. THOMAS, S. D. STEENROD, J. C. RAUT, C. WILSON, M. P. CHIPPERFIELD, G. S. DISKIN, A. WEINHEIMER, H. SCHLAGER et G. ANCELLET (2015). « Multi-model study of chemical and physical controls on transport of anthropogenic and biomass burning pollution to the Arctic ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 15.6, p. 3575-3603.
- MORRISON, H., G. THOMPSON et V. TATARSKII (2009). « Impact of cloud microphysics on the development of trailing stratiform precipitation in a simulated squall line : Comparison of one-and two-moment schemes ». In : *Monthly Weather Review* 137.3, p. 991-1007.
- MORRISON, H., G. DE BOER, G. FEINGOLD, J. HARRINGTON, M. D. SHUPE et K. SULIA (2012). « Resilience of persistent Arctic mixed-phase clouds ». In : *Nature Geoscience* 5.1, p. 11-17.
- MORRISON, H., P. ZUIDEMA, A. S. ACKERMAN, A. AVRAMOV, G. DE BOER, J. FAN, A. M. FRIDLIND, T. HASHINO, J. Y. HARRINGTON, Y. LUO et al. (2011). « Intercomparison of cloud model simulations of Arctic mixed-phase boundary layer clouds observed during SHEBA/FIRE-ACE ». In : *Journal of Advances in Modeling Earth Systems* 3.2.
- ØDEMARK, K., S. B. DALSRØEN, B. H. SAMSET, T. K. BERNTSEN, J. S. FUGLESTVEDT et G. MYHRE (2012). « Short-lived climate forcers from current shipping and petroleum activities in the Arctic ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 12.4, p. 1979-1993.
- OMAR, A., Z. LIU, M. VAUGHAN, K. THORNHILL, C. KITAKA, S. ISMAIL, Y. HU, G. CHEN, K. POWELL, D. WINKER et al. (2010). « Extinction-to-backscatter ratios of Saharan dust layers derived from in situ measurements and CALIPSO overflights during NAMMA ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 115.D24.
- OVERLAND, J. E. et M. WANG (2013). « When will the summer Arctic be nearly sea ice free ? ». In : *Geophysical Research Letters* 40.10, p. 2097-2101.
- PEROVICH, D., K. JONES, B. LIGHT, H. EICKEN, T. MARKUS, J. STROEVE et R. LINDSAY (2011). « Solar partitioning in a changing Arctic sea-ice cover ». In : *Annals of Glaciology* 52.57, p. 192-196.
- PEROVICH, D. K. et C. POLASHENSKI (2012). « Albedo evolution of seasonal Arctic sea ice ». In : *Geophysical Research Letters* 39.8.
- PERSSON, P. O. G. (2012). « Onset and end of the summer melt season over sea ice : Thermal structure and surface energy perspective from SHEBA ». In : *Climate dynamics* 39.6, p. 1349-1371.
- PERSSON, P. O. G., C. W. FAIRALL, E. L. ANDREAS, P. S. GUEST et D. K. PEROVICH (2002). « Measurements near the Atmospheric Surface Flux Group tower at SHEBA : Near-surface conditions and surface energy budget ». In : 107.C10, SHE-21.
- PETERS, G. P., T. B. NILSSEN, L. LINDHOLT, M. S. EIDE, S. GLOMSRØD, L. I. EIDE et J. S. FUGLESTVEDT (2011). « Future emissions from shipping and petroleum activities in the Arctic ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 11.11, p. 5305-5320.

- PETERSON, D. A., E. J. HYER, J. R. CAMPBELL, M. D. FROMM, J. W. HAIR, C. F. BUTLER et M. A. FENN (2015). « The 2013 Rim Fire : Implications for predicting extreme fire spread, pyroconvection, and smoke emissions ». In : *Bulletin of the American Meteorological Society* 96.2, p. 229-247.
- PÉTRON, G., A. KARION, C. SWEENEY, B. R. MILLER, S. A. MONTZKA, G. J. FROST, M. TRAINER, P. TANS, A. ANDREWS, J. KOFLER et al. (2014). « A new look at methane and nonmethane hydrocarbon emissions from oil and natural gas operations in the Colorado Denver-Julesburg Basin ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 119.11, p. 6836-6852.
- PETERS, M. D., C. M. CARRICO, S. M. KREIDENWEIS, A. J. PRENNI, P. J. DEMOTT, J. L. COLLETT et H. MOOSMÜLLER (2009). « Cloud condensation nucleation activity of biomass burning aerosol ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 114.D22. D22205.
- PETERS, M. et S. KREIDENWEIS (2007). « A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 7.8, p. 1961-1971.
- POMMIER, M., K. S. LAW, C. CLERBAUX, S. TURQUETY, D. HURTMANS, J. HADJI-LAZARO, P.-F. COHEUR, H. SCHLAGER, G. ANCELLET, J.-D. PARIS, P. NÉDÉLEC, G. S. DISKIN, J. R. PODOLSKÉ, J. S. HOLLOWAY et P. BERNATH (2010). « IASI carbon monoxide validation over the Arctic during POLARCAT spring and summer campaigns ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 10.21, p. 10655-10678.
- PONOMAREV, E. I. (2013). « Radiative power of wildfires in Siberia on the basis of TERRA/Modis imagery processing ». In : *Folia Forestalia Polonica, Seria A-Forestry* 55.2, p. 102-110.
- PRANK, M., M. SOFIEV, H. A. C. DENIER VAN DER GON, M. KAASIK, T. M. RUUSKANEN et J. KUKKONEN (2010). « A refinement of the emission data for Kola Peninsula based on inverse dispersion modelling ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 10.22, p. 10849-10865.
- PRENNI, A. J., J. Y. HARRINGTON, M. TJERNSTRÖM, P. J. DEMOTT, A. AVRAMOV, C. N. LONG, S. M. KREIDENWEIS, P. Q. OLSSON et J. VERLINDE (2007). « Can ice-nucleating aerosols affect Arctic seasonal climate? » In : *Bulletin of the American Meteorological Society* 88.4, p. 541-550.
- PRUPPACHER, H. R. et J. D. KLETT (2012). *Microphysics of Clouds and Precipitation : Reprinted 1980*. Springer Science & Business Media.
- QUENNEHEN, B., A. SCHWARZENBOECK, A. MATSUKI, J. F. BURKHART, A. STOHL, G. ANCELLET et K. S. LAW (2012). « Anthropogenic and forest fire pollution aerosol transported to the Arctic : observations from the POLARCAT-France spring campaign ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 12.14, p. 6437-6454.
- QUENNEHEN, B., J.-C. RAUT, K. S. LAW, N. DASKALAKIS, G. ANCELLET, C. CLERBAUX, S.-W. KIM, M. LUND, G. MYHRE, D. OLIVÉ, S. SAFIEDDINE, R. B. SKEIE, J. L. THOMAS, S. TSYRO, A. BAZUREAU, N. BELLOUIN, M. HU, M. KANAKIDOU, Z. KLIMONT, K. KUPIAINEN, S. MYRIOKEFALITAKIS, J. QUAAS, S. T. RUMBOLD, M. SCHULZ, R. CHERIAN, A. SHIMIZU, J. WANG, S.-C. YOON et T. ZHU (2016). « Multi-model evaluation of short-lived pollutant distributions over east Asia during summer 2008 ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 16.17, p. 10765-10792.
- QUINN, P. K., T. S. BATES, E. BAUM, N. DOUBLEDAY, A. M. FIORE, M. FLANNER, A. FRIDLIND, T. J. GARRETT, D. KOCH, S. MENON, D. SHINDELL, A. STOHL et S. G. WARREN (2008). « Short-lived pollutants in the Arctic : their climate impact and possible mitigation strategies ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 8.6, p. 1723-1735.
- QUINN, P. K., G. SHAW, E. ANDREWS, E. G. DUTTON, R.-A. T. et S. L. GONG (2007). « Arctic haze : current trends and knowledge gaps ». In : *Tellus B* 59.1, p. 99-114.
- RAHN, K. A., R. D. BORYS et G. E. SHAW (août 1977). « The Asian source of Arctic haze bands ». In : *Nature* 268.5622, p. 713-715.
- RAUT, J.-C. et P. CHAZETTE (2007). « Retrieval of aerosol complex refractive index from a synergy between lidar, sunphotometer and in situ measurements during LISAIR experiment ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 7.11, p. 2797-2815.
- (2008a). « Radiative budget in the presence of multi-layered aerosol structures in the framework of AMMA SOP-0 ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 8.22, p. 6839-6864.
- (2008b). « Vertical profiles of urban aerosol complex refractive index in the frame of ESQUIF airborne measurements ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 8.4, p. 901-919.
- RAUT, J.-C. et P. CHAZETTE (2009). « Assessment of vertically-resolved PM 10 from mobile lidar observations ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 9.21, p. 8617-8638.
- RAUT, J.-C., P. CHAZETTE et A. FORTAIN (2009a). « Link between aerosol optical, microphysical and chemical measurements in an underground railway station in Paris ». In : *Atmospheric Environment* 43.4, p. 860-868.
- (2009b). « New approach using lidar measurements to characterize spatiotemporal aerosol mass distribution in an underground railway station in Paris ». In : *Atmospheric environment* 43.3, p. 575-583.

- RAUT, J.-C., L. MARELLE, J. D. FAST, J. L. THOMAS, B. WEINZIERL, K. S. LAW, L. K. BERG, A. ROIGER, R. C. EASTER, K. HEIMERL, T. ONISHI, J. DELANOË et H. SCHLAGER (2017). « Cross-polar transport and scavenging of Siberian aerosols containing black carbon during the 2012 ACCESS summer campaign ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 17, p. 10969-10995.
- RIGOR, I. G., R. L. COLONY et S. MARTIN (2000). « Variations in surface air temperature observations in the Arctic, 1979–97 ». In : *Journal of Climate* 13.5, p. 896-914.
- ROIGER, A., J.-L. THOMAS, H. SCHLAGER, K. S. LAW, J. KIM, A. SCHÄFLER, B. WEINZIERL, F. DAHLKÖTTER, I. KRISCH, L. MARELLE, A. MINIKIN, J.-C. RAUT, A. REITER, M. ROSE, M. SCHEIBE, P. STOCK, R. BAUMANN, I. BOUARAR, C. CLERBAUX, M. GEORGE, T. ONISHI et J. FLEMMING (2015). « Quantifying emerging local anthropogenic emissions in the Arctic region : The ACCESS aircraft campaign experiment ». In : *Bulletin of the American Meteorological Society* 96.3, p. 441-460.
- ROSENFELD, D. (1999). « TRMM observed first direct evidence of smoke from forest fires inhibiting rainfall ». In : *Geophysical research letters* 26.20, p. 3105-3108.
- (2000). « Suppression of rain and snow by urban and industrial air pollution ». In : *Science* 287.5459, p. 1793-1796.
- ROYER, P., P. CHAZETTE, K. SARTELET, Q. ZHANG, M. BEEKMANN et J.-C. RAUT (2011). « Comparison of lidar-derived PM 10 with regional modeling and ground-based observations in the frame of MEGAPOLI experiment ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 11.20, p. 10705-10726.
- ROYER, P., J.-C. RAUT, G. AJELLO, S. BERTHIER et P. CHAZETTE (2010). « Synergy between CALIOP and MODIS instruments for aerosol monitoring : application to the Po Valley ». In : *Atmospheric Measurement Techniques* 3.4, p. 893-907.
- SAFIEDDINE, S., A. BOYNARD, P.-F. COHEUR, D. HURTMANS, G. PFISTER, B. QUENNEHEN, J. L. THOMAS, J.-C. RAUT, K. S. LAW, Z. KLIMONT, J. HADJI-LAZARO, M. GEORGE et C. CLERBAUX (2014). « Summertime tropospheric ozone assessment over the Mediterranean region using the thermal infrared IASI/MetOp sounder and the WRF-Chem model ». In : *Atmospheric chemistry and physics* 14.18, p. 10119-10131.
- SAHU, L. K., Y. KONDO, N. MOTEKI, N. TAKEGAWA, Y. ZHAO, M. J. CUBISON, J. L. JIMENEZ, S. VAY, G. S. DISKIN, A. WISTHALER, T. MIKOVINY, L. G. HUEY, A. J. WEINHEIMER et D. J. KNAPP (2012). « Emission characteristics of black carbon in anthropogenic and biomass burning plumes over California during ARCTAS-CARB 2008 ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 117.D16. D16302.
- SAMSET, B. H., G. MYHRE, A. HERBER, Y. KONDO, S.-M. LI, N. MOTEKI, M. KOIKE, N. OSHIMA, J. P. SCHWARZ, Y. BALKANSKI, S. E. BAUER, N. BELLOUIN, T. K. BERNTSEN, H. BIAN, M. CHIN, T. DIEHL, R. C. EASTER, S. J. GHAN, T. IVERSEN, A. KIRKEVÅG, J.-F. LAMARQUE, G. LIN, X. LIU, J. E. PENNER, M. SCHULZ, Ø. SELAND, R. B. SKEIE, P. STIER, T. TAKEMURA, K. TSIGARIDIS et K. ZHANG (2014). « Modelled black carbon radiative forcing and atmospheric lifetime in AeroCom Phase II constrained by aircraft observations ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 14.22, p. 12465-12477.
- SAMSET, B. H. et G. MYHRE (2011). « Vertical dependence of black carbon, sulphate and biomass burning aerosol radiative forcing ». In : *Geophysical Research Letters* 38.24.
- SCHMALE, J., J. SCHNEIDER, G. ANCELLET, B. QUENNEHEN, A. STOHL, H. SODEMANN, J. BURKHART, T. HAMBURGER, S. ARNOLD, A. SCHWARZENBOECK et al. (2011). « Source identification and airborne chemical characterisation of aerosol pollution from long-range transport over Greenland during POLARCAT summer campaign 2008 ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 11.19, p. 10097-10123.
- SCHWARZ, J., B. SAMSET, A. PERRING, J. SPACKMAN, R. GAO, P. STIER, M. SCHULZ, F. MOORE, E. A. RAY et D. FAHEY (2013). « Global-scale seasonally resolved black carbon vertical profiles over the Pacific ». In : *Geophysical research letters* 40.20, p. 5542-5547.
- SCHWARZ, J., J. SPACKMAN, R. GAO, L. WATTS, P. STIER, M. SCHULZ, S. DAVIS, S. WOFSY et D. FAHEY (2010). « Global-scale black carbon profiles observed in the remote atmosphere and compared to models ». In : *Geophysical Research Letters* 37.18.
- SEDLAR, J., M. D. SHUPE et M. TJERNSTRÖM (2012). « On the relationship between thermodynamic structure and cloud top, and its climate significance in the Arctic ». In : *Journal of Climate* 25.7, p. 2374-2393.
- SHARMA, S., M. ISHIZAWA, D. CHAN, D. LAVOUÉ, E. ANDREWS, K. ELEFTHERIADIS et S. MAKSYUTOV (2013). « 16-year simulation of Arctic black carbon : Transport, source contribution, and sensitivity analysis on deposition ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 118.2, p. 943-964.
- SHINDELL, D. (2007). « Local and remote contributions to Arctic warming ». In : *Geophysical Research Letters* 34.14. L14704.
- SHINDELL, D., G. FALUVEGI, A. LACIS, J. HANSEN, R. RUEDY et E. AGUILAR (2006). « Role of tropospheric ozone increases in 20th-century climate change ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 111.D8. D08302.

- SHINDELL, D., M. CHIN, F. DENTENER, R. DOHERTY, G. FALUVEGI, A. M. FIORE, P. HESS, D. KOCH, I. MACKENZIE, M. SANDERSON et al. (2008). « A multi-model assessment of pollution transport to the Arctic ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 8.17, p. 5353-5372.
- SHRIVASTAVA, M., J. FAST, R. EASTER, W. I. GUSTAFSON JR., R. A. ZAVERI, J. L. JIMENEZ, P. SAIDE et A. HODZIC (2011). « Modeling organic aerosols in a megacity : comparison of simple and complex representations of the volatility basis set approach ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 11.13, p. 6639-6662.
- SHRIVASTAVA, M., R. C. EASTER, X. LIU, A. ZELENYUK, B. SINGH, K. ZHANG, P.-L. MA, D. CHAND, S. GHAN, J. L. JIMENEZ, Q. ZHANG, J. FAST, P. J. RASCH et P. TIITTA (2015). « Global transformation and fate of SOA : Implications of low-volatility SOA and gas-phase fragmentation reactions ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 120.9, 2014JD022563, p. 4169-4195.
- SHUPE, M. D. et J. M. INTRIERI (2004). « Cloud Radiative Forcing of the Arctic Surface : The Influence of Cloud Properties, Surface Albedo, and Solar Zenith Angle ». In : *J. Climate* 17.3, p. 616-628.
- SHUPE, M. D., S. Y. MATROSOV et T. UTTAL (2006). « Arctic mixed-phase cloud properties derived from surface-based sensors at SHEBA ». In : *Journal of the atmospheric sciences* 63.2, p. 697-711.
- SHUPE, M. D., V. P. WALDEN, E. ELORANTA, T. UTTAL, J. R. CAMPBELL, S. M. STARKWEATHER et M. SHIOBARA (2011). « Clouds at Arctic atmospheric observatories. Part I : Occurrence and macrophysical properties ». In : *Journal of Applied Meteorology and Climatology* 50.3, p. 626-644.
- SHUPE, M., P. PERSSON, I. BROOKS, M. TJERNSTRÖM, C. LECK, J. SEDLAR, T. MAURITSEN et S. SJÖGREN (2013). « Cloud and boundary layer interactions over the Arctic sea ice in late summer ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 13.18, p. 9379-9400.
- SIMMEL, M. et S. WURZLER (2006). « Condensation and activation in sectional cloud microphysical models ». In : *Atmospheric research* 80.2-3, p. 218-236.
- SMITH, L. C. et S. R. STEPHENSON (2013). « New Trans-Arctic shipping routes navigable by midcentury ». In : *Proceedings of the National Academy of Sciences* 110.13, p. 1191-1195.
- SOLBERG, S., C. DYE, N. SCHMIDBAUER, A. HERZOG et R. GEHRIG (1996). « Carbonyls and nonmethane hydrocarbons at rural European sites from the mediterranean to the arctic ». In : *Journal of Atmospheric Chemistry* 25.1, p. 33-66.
- SOLOMON, A., M. D. SHUPE, P. PERSSON et H. MORRISON (2011). « Moisture and dynamical interactions maintaining decoupled Arctic mixed-phase stratocumulus in the presence of a humidity inversion. » In : *Atmospheric Chemistry & Physics Discussions* 11.5.
- STERK, H. A. M., G. J. STEENEVELD et A. A. M. HOLTSLAG (2013). « The role of snow-surface coupling, radiation, and turbulent mixing in modeling a stable boundary layer over Arctic sea ice ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 118.3, p. 1199-1217.
- STERK, H. A. M., G. J. STEENEVELD, T. VIHMA, P. S. ANDERSON, F. C. BOSVELD et A. A. M. HOLTSLAG (2015). « Clear-sky stable boundary layers with low winds over snow-covered surfaces. Part 1 : WRF model evaluation ». In : *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 141.691, p. 2165-2184.
- STOHL, A. (2006). « Characteristics of atmospheric transport into the Arctic troposphere ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 111.D11, D11306.
- STOHL, A., Z. KLIMONT, S. ECKHARDT, K. KUPIAINEN, V. SHEVCHENKO, V. KOPEIKIN et A. NOVIGATSKY (2013). « Black carbon in the Arctic : the underestimated role of gas flaring and residential combustion emissions ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 13.17, p. 8833-8855.
- STOHL, A., B. AAMAAS, M. AMANN, L. BAKER, N. BELLOUIN, T. K. BERNTSEN, O. BOUCHER, R. CHERIAN, W. COLLINS, N. DASKALAKIS, M. DUSINSKA, S. ECKHARDT, J. S. FUGLESTVEDT, M. HARJU, C. HEYES, Ø. HODNEBROG, J. HAO, U. IM, M. KANAKIDOU, Z. KLIMONT, K. KUPIAINEN, K. S. LAW, M. T. LUND, R. MAAS, C. R. MACINTOSH, G. MYHRE, S. MYRIOKEFALITAKIS, D. OLIVIÉ, J. QUAAS, B. QUENNEHEN, J.-C. RAUT, S. T. RUMBOLD, B. H. SAMSET, M. SCHULZ, Ø. SELAND, K. P. SHINE, R. B. SKEIE, S. WANG, K. E. YTTRI et T. ZHU (2015). « Evaluating the climate and air quality impacts of short-lived pollutants ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 15.18, p. 10529-10566.
- STONE, R., A. HERBER, V. VITALE, M. MAZZOLA, A. LUPI, R. SCHNELL, E. DUTTON, P. LIU, S.-M. LI, K. DETHLOFF et al. (2010). « A three-dimensional characterization of Arctic aerosols from airborne Sun photometer observations : PAM-ARCMIP, April 2009 ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 115.D13.
- STORELMO, T. (2017). « Aerosol effects on climate via mixed-phase and ice clouds ». In : *Annual Review of Earth and Planetary Sciences* 45, p. 199-222.
- STROEVE, J. C., V. KATSOV, A. BARRETT, M. SERREZE, T. PAVLOVA, M. HOLLAND et W. N. MEIER (2012). « Trends in Arctic sea ice extent from CMIP5, CMIP3 and observations ». In : *Geophysical Research Letters* 39.16.
- TANSKANEN, A. et T. MANNINEN (2007). « Effective UV surface albedo of seasonally snow-covered lands ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 7.10, p. 2759-2764.

- TETZLAFF, A., C. LÜPKES et J. HARTMANN (2015). « Aircraft-based observations of atmospheric boundary-layer modification over Arctic leads ». In : *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 141.692, p. 2839-2856.
- THOMAS, J. L., C. M. POLASHENSKI, A. J. SOJA, L. MARELLE, K. A. CASEY, H. D. CHOI, J.-C. RAUT, C. WIEDINMYER, L. K. EMMONS, J. D. FAST, J. PELON, K. S. LAW, M. G. FLANNER et J. E. DIBB (2017). « Quantifying black carbon deposition over the Greenland ice sheet from forest fires in Canada ». In : *Geophysical Research Letters* 44.15, p. 7965-7974.
- THOMAS, J. L., J.-C. RAUT, K. S. LAW, L. MARELLE, G. ANCELLET, F. RAVETTA, J. D. FAST, G. PFISTER, L. EMMONS, G. DISKIN, A. WEINHEIMER, A. ROIGER et H. SCHLAGER (2013). « Pollution transport from North America to Greenland during summer 2008 ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 13.7, p. 3825-3848.
- TJERNSTROM, M., C. E. BIRCH, I. M. BROOKS, M. D. SHUPE, P. O. G. PERSSON, J. SEDLAR, T. MAURITSEN, C. LECK, J. PAATERO, M. SZCZODRAK et al. (2012). « Meteorological conditions in the central Arctic summer during the Arctic Summer Cloud Ocean Study (ASCOS) ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 12.15, p. 6863-6889.
- TOTEMS, J., P. CHAZETTE et J.-C. RAUT (2019). « Accuracy of current Arctic springtime water vapour estimates, assessed by Raman lidar ». In : *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*.
- TSIGARIDIS, K., N. DASKALAKIS, M. KANAKIDOU, P. ADAMS, P. ARTAXO, R. BAHADUR, Y. BALKANSKI, S. BAUER, N. BELLOUIN, A. BENEDETTI et al. (2014). « The AeroCom evaluation and intercomparison of organic aerosol in global models ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 14.19, p. 10845-10895.
- TUCCELLA, P., J. L. THOMAS, K. S. LAW, J.-C. RAUT, L. MARELLE, A. ROIGER, B. WEINZIERL, H. D. van DER GON, H. SCHLAGER et T. ONISHI (2017). « Air pollution impacts due to petroleum extraction in the Norwegian Sea during the ACCESS aircraft campaign ». In : *Elementa : Science of the Anthropocene* 5, p. 25.
- TUNVED, P., J. STRÖM et R. KREJCI (2013). « Arctic aerosol life cycle : linking aerosol size distributions observed between 2000 and 2010 with air mass transport and precipitation at Zeppelin station, Ny-Ålesund, Svalbard ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 13.7, p. 3643-3660.
- TURNER, D. D. (2005). « Arctic mixed-phase cloud properties from AERI lidar observations : Algorithm and results from SHEBA ». In : *Journal of Applied Meteorology* 44.4, p. 427-444.
- TWOMEY, S. (1974). « Pollution and the planetary albedo ». In : *Atmospheric Environment* (1967) 8.12, p. 1251-1256.
- (1977). « The Influence of Pollution on the Shortwave Albedo of Clouds ». In : *J. Atmos. Sci.* 34.7, p. 1149-1152.
- ULLRICH, R., C. HOOSE, O. MÖHLER, M. NIEMAND, R. WAGNER, K. HÖHLER, N. HIRANUMA, H. SAATHOFF et T. LEISNER (2017). « A new ice nucleation active site parameterization for desert dust and soot ». In : *Journal of the Atmospheric Sciences* 74.3, p. 699-717.
- VIHMA, T., R. PIRAZZINI, I. FER, I. A. RENFREW, J. SEDLAR, M. TJERNSTRÖM, C. LÜPKES, T. NYGÅRD, D. NOTZ, J. WEISS, D. MARSAN, B. CHENG, G. BIRNBAUM, S. GERLAND, D. CHECHIN et J. C. GASCARD (2014). « Advances in understanding and parameterization of small-scale physical processes in the marine Arctic climate system : a review ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 14.17, p. 9403-9450.
- VIRKKULA, A., R. E. HILLAMO, V.-M. KERMINEN et A. STOHL (1997). « The influence of Kola Peninsula, continental European and marine sources on the number concentrations and scattering coefficients of the atmospheric aerosol in Finnish Lapland ». In : *Boreal Environ. Res.* 2, p. 317-336.
- WALTER, D., K.-P. HEUE, A. RAUTHE-SCHÖCH, C. BRENNINKMEIJER, L. LAMSAL, N. KROTKOV et U. PLATT (2012). « Flux calculation using CARIBIC DOAS aircraft measurements : SO₂ emission of Norilsk ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 117.D11.
- WANG, Q., D. J. JACOB, J. R. SPACKMAN, A. E. PERRING, J. P. SCHWARZ, N. MOTTEKI, E. A. MARAIS, C. GE, J. WANG et S. R. BARRETT (2014). « Global budget and radiative forcing of black carbon aerosol : Constraints from pole-to-pole (HIPPO) observations across the Pacific ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 119.1, p. 195-206.
- WANG, X. et J. R. KEY (2003). « Recent trends in Arctic surface, cloud, and radiation properties from space ». In : *Science* 299.5613, p. 1725-1728.
- WARNEKE, C., R. BAHREINI, J. BRIOUDE, C. A. BROCK, J. A. de GOUW, D. W. FAHEY, K. D. FROYD, J. S. HOLLOWAY, A. MIDDLEBROOK, L. MILLER, S. MONTZKA, D. M. MURPHY, J. PEISCHL, T. B. RYERSON, J. P. SCHWARZ, J. R. SPACKMAN et P. VERES (2009). « Biomass burning in Siberia and Kazakhstan as an important source for haze over the Alaskan Arctic in April 2008 ». In : *Geophysical Research Letters* 36.2. L02813.
- WARREN, S. G. et W. J. WISCOMBE (1980). « A model for the spectral albedo of snow. II : Snow containing atmospheric aerosols ». In : *Journal of the Atmospheric Sciences* 37.12, p. 2734-2745.
- WESELY, M. et B. HICKS (2000). « A review of the current status of knowledge on dry deposition ». In : *Atmospheric environment* 34.12, p. 2261-2282.

- WEX, H., L. HUANG, W. ZHANG, H. HUNG, R. TRAVERSI, S. BECAGLI, R. J. SHEESLEY, C. E. MOFFETT, T. E. BARRETT, R. BOSSI et al. (2019). « Annual variability of ice-nucleating particle concentrations at different Arctic locations ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 19.7, p. 5293-5311.
- WEXLER, A. S., F. W. LURMANN et J. H. SEINFELD (1994). « Modelling urban and regional aerosols : Part I - Model development ». In : *Atmospheric Environment* 28.3, p. 531-546.
- WHEELER, M. J. et A. K. BERTRAM (2012). « Deposition nucleation on mineral dust particles : a case against classical nucleation theory with the assumption of a single contact angle ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 12.2, p. 1189-1201.
- WINKER, D., J. TACKETT, B. GETZEWICH, Z. LIU, M. VAUGHAN et R. ROGERS (2013). « The global 3-D distribution of tropospheric aerosols as characterized by CALIOP ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 13.6, p. 3345-3361.
- WINTHER, M., J. H. CHRISTENSEN, M. S. PLEJDRUP, E. S. RAVN, Ö. F. ERIKSSON et H. O. KRISTENSEN (2014). « Emission inventories for ships in the arctic based on satellite sampled AIS data ». In : *Atmospheric Environment* 91, p. 1-14.
- WOFSY, S. C. (2011). « HIPER Pole-to-Pole Observations (HIPPO) : fine-grained, global-scale measurements of climatically important atmospheric gases and aerosols ». In : *Philosophical Transactions of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 369.1943, p. 2073-2086.
- YOUNG, S. A. et M. A. VAUGHAN (2009). « The Retrieval of Profiles of Particulate Extinction from Cloud-Aerosol Lidar Infrared Pathfinder Satellite Observations (CALIPSO) Data : Algorithm Description ». In : *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 26.6, p. 1105-1119.
- YTTRI, K. E., C. LUND MYHRE, S. ECKHARDT, M. FIEBIG, C. DYE, D. HIRDMAN, J. STRÖM, Z. KLIMONT et A. STOHL (2014). « Quantifying black carbon from biomass burning by means of levoglucosan—a one-year time series at the Arctic observatory Zeppelin ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 14.12, p. 6427-6442.
- ZAVERI, R. A., R. C. EASTER, J. D. FAST et L. K. PETERS (2008). « Model for Simulating Aerosol Interactions and Chemistry (MOSAIC) ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 113.D13. D13204.
- ZAVERI, R. A., R. C. EASTER et L. K. PETERS (2005a). « A computationally efficient multicomponent equilibrium solver for aerosols (MESA) ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 110.D24.
- ZAVERI, R. A., R. C. EASTER et A. S. WEXLER (2005b). « A new method for multicomponent activity coefficients of electrolytes in aqueous atmospheric aerosols ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 110.D2.
- ZAVERI, R. A. et L. K. PETERS (1999). « A new lumped structure photochemical mechanism for large-scale applications ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 104.D23, p. 30387-30415.
- ZHANG, T., T. E. OSTERKAMP et K. STAMNES (1996). « Influence of the depth hoar layer of the seasonal snow cover on the ground thermal regime ». In : *Water Resources Research* 32.7, p. 2075-2086.