

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À MONTRÉAL

ÉTUDE DE L'IMPACT DES ÉMISSIONS DES BATEAUX SUR LES NUAGES
ET LE BILAN RADIATIF DANS LES RÉGIONS SUBPOLAIRES

MÉMOIRE

PRÉSENTÉ

COMME EXIGENCE PARTIELLE

DE LA MAÎTRISE EN SCIENCES DE L'ATMOSPHÈRE

PAR

OLIVIER LEMOINE

JANVIER 2021

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À MONTRÉAL
Service des bibliothèques

Avertissement

La diffusion de ce mémoire se fait dans le respect des droits de son auteur, qui a signé le formulaire *Autorisation de reproduire et de diffuser un travail de recherche de cycles supérieurs* (SDU-522 – Rév.10-2015). Cette autorisation stipule que «conformément à l'article 11 du Règlement no 8 des études de cycles supérieurs, [l'auteur] concède à l'Université du Québec à Montréal une licence non exclusive d'utilisation et de publication de la totalité ou d'une partie importante de [son] travail de recherche pour des fins pédagogiques et non commerciales. Plus précisément, [l'auteur] autorise l'Université du Québec à Montréal à reproduire, diffuser, prêter, distribuer ou vendre des copies de [son] travail de recherche à des fins non commerciales sur quelque support que ce soit, y compris l'Internet. Cette licence et cette autorisation n'entraînent pas une renonciation de [la] part [de l'auteur] à [ses] droits moraux ni à [ses] droits de propriété intellectuelle. Sauf entente contraire, [l'auteur] conserve la liberté de diffuser et de commercialiser ou non ce travail dont [il] possède un exemplaire.»

REMERCIEMENTS

Je remercie le LATMOS pour son accueil et son aide précieuse, tout particulièrement Jean-Christophe Raut pour ses judicieux conseils et sa grande patience, Tatsuo Onishi pour ses scripts utilisés pour modélisation numérique, ainsi que le reste de l'équipe informatique.

Je remercie Jean-Pierre Blanchet pour ses conseils scientifiques, sa détermination et son expérience qui m'a aidé à finaliser ce mémoire. Je remercie également Maud Leriche pour ses conseils inestimables, son support collaboratif et son expérience scientifique, qui m'a aidé à aller jusqu'au bout sans jamais abandonner. J'aimerais également remercier l'assistance technique de l'équipe informatique de l'UQAM.

J'aimerais rendre hommage à Éric Girard, pour sa transmission de sa passion de la microphysique des nuages et sans quoi ce projet collaboratif n'aurait jamais eu lieu.

Finalement, une mention spéciale à ma famille, ma conjointe, mes amis et mes collègues de bureau pour le support émotionnel, scientifique et les nombreux 5 à 7 permettant de décompresser et de profiter de la vie tout en gardant mes objectifs professionnels en vue.

TABLE DES MATIÈRES

LISTE DES FIGURES.....	V
LISTE DES TABLEAUX.....	XI
LISTE DES ACRONYMES	XIII
LISTE DES SYMBOLES	XIV
RÉSUMÉ	XVI
CHAPITRE I	
INTRODUCTION ET REVUE DE LITTÉRATURE.....	1
CHAPITRE II	
MÉTHODOLOGIE.....	17
2.1 Outil de modélisation : WRF-Chem.....	18
2.1.1 Description de CBM-Z-MOSAIC.....	19
2.1.2 Description du schéma de microphysique des nuages	21
2.2 Configuration des simulations.....	24
2.2.1 Météorologie	29
2.2.2 Chimie et émissions	30
2.3 Comparaisons et validation	36
2.4 Méthodes d'analyse des résultats.....	37
2.4.1 La moyenne et les filtres utilisés.....	38
2.4.2 Approximation de la hauteur du géopotential (GHT) et approximation de la couche limite.	38
2.4.3 Le forçage radiatif.....	39
2.4.4 Mode d'accumulation.....	40
2.4.5 Rétrotrajectoires	40
CHAPITRE III	
IMPACT DES BATEAUX SUR LES NUAGES AU LARGE DES ALÉOUTIENNES.	41

3.1	Analyse synoptique.....	41	
3.2	Effet des bateaux sur la qualité de l'air	45	
3.3	Forçage radiatif des bateaux sur l'atmosphère	55	
3.4	Les propriétés macrophysiques d'une couche limite perturbée par les bateaux	57	
3.5	Propriétés des nuages de la couche limite marine	64	
3.6	Sensibilité de l'atmosphère.....	70	
3.7	L'effet des bateaux sur les précipitations.	74	
3.8	Performance de la chimie du modèle	77	
3.9	Résumé	77	
CHAPITRE IV			
ÉTUDE DE CAS			79
4.1	Analyse synoptique.....	80	
4.2	Analyse chimique	90	
CONCLUSION.....		100	
BIBLIOGRAPHIE		106	

LISTE DES FIGURES

Figure	Page
Figure 2.1 Domaines des simulations. En rouge, le domaine BIG. En vert, le domaine piloté SMALL. En jaune, le domaine de l'étude de cas STUDY. Le point rouge représente Anchorage, Alaska, USA, le point noir représente la position géographique du profil vertical à Kodiak, Alaska, USA et le point vert la station météorologique et de qualité de l'air d'ECCE à Mount Whistler, CB, Canada. La trace mauve représente la trajectoire du passage du A-TRAIN le 28 mars 2015 vers 23 :32 UTC. À titre de référence, les émissions de SO ₂ des bateaux selon CAMS-GLOB-SHIP entre le 15 et 30 mars 2015 sont fournies.....	28
Figure 2.2 Flux moyen des émissions anthropiques HTAPV2 inséré pour A) le dioxyde de soufre, B) les oxydes d'azote C) le carbone-suie et D) le xylène. Flux moyen des émissions anthropiques de bateaux selon CAMS-GLOB-SHIP inséré dans le modèle pour A) le dioxyde de soufre, B) les oxydes d'azote, C) le carbone-suie et D) le sulfate.....	35
Figure 3.1 Situation météorologique de l'hémisphère nord le 20 mars 2015. Les couleurs représentent les épaisseurs géopotentielle en m de la couche 1000-500 hpa, entre 4740 m et 5820 m. Les lignes pleines noires représentent la pression au niveau de la mer en hpa.	43
Figure 3.2 Évolution de la situation météorologique sur le nord du Pacifique pour la période du 15 au 30 mars 2015 pour A) le 15 mars, B) 20 mars, C) 25 mars, D) le 30 mars. Les lignes pointillées représentent la pression en hPa en surface et les lignes pleines représentent les épaisseurs géopotentielle à 1000-500 hPa en m.	44
Figure 3.3 Émissions de bateaux et changement dans la concentration des composés chimiques dans la CLM entre le 15 et 30 mars 2015 dans le domaine SMALL. Flux d'émission massique provenant des bateaux pour A) le SO ₂ , B) le NO _x et C) le SO ₄ . Changement relatif moyen de la composition de l'air en D) SO ₂ , E) en NO _x et D) en SO ₄ entre la simulation SHIP et NOSHIP , où le changement relatif est calculé comme étant : SHIPespece-NOSHIPespeceNOSHIPespece. La ligne verte et la ligne orange	

représentent respectivement la trajectoire N-S et O-E des coupes verticales des figures 3.6, 3.7 et 3.12. 46

- Figure 3.4 Changement relatif de la concentration en nombre d'aérosols entre la simulation SHIP et NOSHIP, calculé comme étant: $\frac{\text{SHIPdensité d'aérosols}-\text{NOSHIPdensité d'aérosols}}{\text{NOSHIPdensité d'aérosols}}$, sur le domaine SMALL en A) et sur le domaine BIG en B). Les valeurs qui ne sont pas statistiquement significatives à 95 % selon un test T de Welch ne sont pas montrées. 51
- Figure 3.5 Propriétés moyennes des aérosols dans le mode d'accumulation pour le domaine SMALL pour les simulations SHIP et NOSHIP dans la CLM. En axe vertical, distribution en boîte à moustaches de A) concentration massique en NO₃- (en vert) et SO₄²⁻ (en bleu) et B) la concentration en nombre d'aérosols. Les lignes rouges représentent la médiane. Les extrémités des boîtes représentent le 25^e et 75^e centile. Les lignes bleues pointillées représentent, à leur extrémité supérieure, le 95^e centile, alors que les croix noires représentent toutes les données au-delà du 95^e centile. 52
- Figure 3.6 Coupe verticale du changement relatif moyen de la composition des aérosols en mode d'accumulation en nitrate (A et B), de la composition de l'aérosol en sulfate (C et D) et de la concentration en nombre d'aérosol (E et F) entre les simulations SHIP et NOSHIP. Le changement relatif moyen est calculé comme étant : $\frac{\text{SHIPpropriété}-\text{NOSHIPpropriété}}{\text{NOSHIPpropriété}}$. La coupe verticale est analysée sur la trace N-S pour A), C) et E) et sur la trace E-O pour B), D) et F). La trajectoire des traces se situe sur la figure 3.3. La ligne rouge représente la hauteur moyenne de la couche limite marine. 53
- Figure 3.7 Coupe verticale du changement relatif moyen de la composition des aérosols en mode d'accumulation en nitrate (A, B), de la composition de l'aérosol en sulfate (C et D) et de la concentration en nombre d'aérosol (E et F) entre les simulations SHIP et NOSHIP. Le changement relatif moyen est calculé comme étant : $\frac{\text{SHIPpropriété}-\text{NOSHIPpropriété}}{\text{NOSHIPpropriété}}$. La coupe verticale est analysée sur la trace N-S pour A), C) et E) et sur la trace E-O pour B), D) et F). La trajectoire des traces se situe sur la figure 3.3. La ligne rouge représente la hauteur moyenne de la couche limite marine. Sur cette figure, un test T de Welch a été appliqué pour une probabilité de 95 % et les valeurs non statistiquement significatives ont été blanchies. 54
- Figure 3.8 Moyenne temporelle du forçage radiatif des émissions de bateaux entre le 15 et 30 mars 2015 dans le domaine SMALL pour A) le forçage radiatif total (indirect+ semi-direct+ direct) et B) le forçage radiatif direct en ciel

- clair. Les cercles de couleurs représentent des structures identifiables utilisées à titre de référence dans le texte..... 57
- Figure 3.9 Changement moyen dans la fraction nuageuse dû aux bateaux pour les niveaux les plus bas du modèle dans le domaine SMALL. A) niveau 1, B) 2, C) 3 et D) 4. Le changement est calculé comme étant $SHIP_{fraction\ nuageuse} - NOSHIP_{fraction\ nuageuse}$. L'impact direct des émissions des bateaux sur la fraction nuageuse et le système secondaire discuté dans le texte sont encadrés respectivement en jaune et en noir..... 61
- Figure 3.10 Changement moyen du contenu en eau liquide dans la colonne atmosphérique (LWP) entre la simulation SHIP et NOSHIP. A) LWPSHIP-LWPNOSHIP, B) LWP moyen de la simulation NOSHIP, C) LWPSHIP-LWPNOSHIP dû à l'augmentation du contenu en eau liquide intranuageux (effets indirects des aérosols sur les nuages) et D) LWPSHIP-LWPNOSHIP dû au changement dans la fraction nuageuse. 63
- Figure 3.11 Modification moyenne de la concentration en gouttelettes de nuages dans la CLM ($SHIP_{concentration} - NOSHIP_{concentration}$). Le changement est calculé seulement lorsqu'un nuage est présent dans les deux simulations aux mêmes endroits et simultanément. En bleu : trace O-E des figures 3.6 et 3.12, en vert : trace N-S de la figure 3.6. 66
- Figure 3.12 Coupe verticale (O-E) du changement dans A) le rapport de mélange, B) la concentration en gouttelettes de nuage et C) le rayon des gouttelettes de nuages entre la simulation SHIP et NOSHIP ($SHIP_{quantité} - NOSHIP_{quantité}$). Le changement est calculé seulement lorsqu'un nuage est présent dans les deux simulations aux mêmes endroits et simultanément. (Voir figure 3.11 pour la trajectoire de la trace). 68
- Figure 3.13 Changement de la taille (rayon) des gouttelettes de nuages à leur sommet entre les deux simulations ($SHIP_{sommet} - NOSHIP_{sommet}$). Les points de grille possédant moins de 10 valeurs servant à la moyenne temporelle ne sont pas montrés..... 69
- Figure 3.14 Effet de l'injection des aérosols provenant des bateaux ($\Delta a_{\text{aérosols}} = SHIP - NOSHIP$) sur A) la concentration en nombre de gouttelettes de nuages ($\Delta G_{\text{gouttelettes}} = SHIP - NOSHIP$) et B) le diamètre des gouttelettes ($\Delta D_{\text{diamètres}} = SHIP - NOSHIP$). Les couleurs des pastilles représentent en A) le contenu en eau liquide de NOSHIP et en B) la taille des gouttelettes. En A) les lignes rouge, bleue, verte représentent respectivement la régression linéaire pour tous les points de grille, les points de grille à grand ($> 1.5\text{gkg}$) et à petit ($< 1.5\text{gkg}$) contenu en eau liquide. En B) les lignes de couleurs représentent la respectivement la

régression linéaire pour tous les points de grille, les points de grille à grande ($> 25 \mu\text{m}$) et à petite ($< 25 \mu\text{m}$) taille des gouttelettes de nuages. En C) et D) : moyenne de A) et B) respectivement sur l'axe des abscisses et ordonnées avec leurs barres de dispersion en axe des abscisses (± 1 écart-type). 73

Figure 3.15 Corrélation temporelle entre Δ Gouttelettes et Δ Aérosols où Δ =SHIP-NOSHIP, en fonction de la concentration initiale en xylène dans la CLM pour a) tous les cas, b) les cas à masse d'air vierge (xylène <4.5 ppbv) et c) les cas à masse d'air polluée (xylène >4.5 ppbv). Seules les valeurs significativement significatives à plus de 95 % sont montrées, les autres données ont été blanchies. 74

Figure 3.16 Distribution de taille des gouttelettes de nuage (A et B) et de pluie (C) dans la couche limite au sud des Aléoutiennes, pour la simulation SHIP (courbe rouge) et NOSHIP (courbe bleue). En A) : L'histogramme est divisé en 10 000 fenêtres de tailles équidistantes entre 2 et 62 μm . En B) : Concentration des gouttelettes normalisée par la concentration totale de gouttelettes et divisée en 100 fenêtres de taille équidistantes entre 2 à 62 μm . En C) : Comme en B , mais pour les gouttelettes de pluie et divisée en 100 fenêtres de 42 à 2000 μm 76

Figure 3.17 Concentration en masse en sulfate (en $\mu\text{g}/\text{m}^3$) simulée par NOSHIP et SHIP (courbe verte et courbe bleue respectivement) et observée par ECCC (courbe rouge), à Whistler Mountain, Altitude de 2182 m avec des filtres Teflon. Voir la figure 3.1 pour la localisation géographique. Voir chapitre 2 pour les détails sur la collecte de données. 78

Figure 4.1 Carte synoptique du Pacifique Nord, entre le 26 et le 29 mars 2015. Les isobares de surface en hpa sont en lignes vertes pointillées et les isohypses d'épaisseur géopotentielle 1000 - 500 hPa en m sont en lignes bleues pleines. En bas à droite est encadré le domaine de la simulation en bleu et la localisation du profil vertical de Kodiak, Alaska, de la figure 4.2 est encadrée en rouge. 83

Figure 4.2 Évolution du profil vertical (selon la pression en hpa) de la température et de la température du point de rosée en $^{\circ}\text{C}$, et des vents (en nœuds) à la station Kodiak, Alaska entre le 28 et 29 mars 2015, situé à 100 km au nord-est du domaine d'étude (voir figure 2.1 et 4.1, pour la localisation). Sur chaque profil, la ligne de droite représente la température, celle de gauche la température du point de rosée. Les vecteurs vents sont représentés dans la colonne de droite. Voir figure 4.1 pour la localisation géographique. 84

Figure 4.3 Réflectivité nuageuse observée et simulée dans le domaine STUDY. Image MODIS-Terra de la réflectivité (albédo) le A) 28 mars à 21 :30Z et B)

- le 29 mars à 22 :17Z avec, en jaune la trajectoire de Cloudsat le 28 mars 2015 à 22 :17Z . C) et E) Albédo le 28 mars à 21 :30Z selon les simulations NOSHIP et SHIP respectivement. D) et F) : similaire à C) et E), mais pour le 29 mars à 22 :30Z. 85
- Figure 4.4 Concentration en gouttelettes de nuages (A, B et C) et leur rayon (D, E et F) vu par le produit 2B-CWC-RVOD de CLOUDSAT (A et D, voir chapitre 2) et simulé par SHIP et NOSHIP (B et C, E et F). Heure de passage approximative de CLOUDSAT le 28 mars 2015 à 22 :17Z. Voir la figure 4.3 pour la trajectoire. 86
- Figure 4.5 Contenu en eau liquide des nuages (A, B et C) et en eau glacée (D, E et F) vu par le produit 2B-CWC-RVOD de CLOUDSAT (A et D) et simulé par SHIP et NOSHIP (B et C, E et F). Heure de passage de CLOUDSAT approximative le 28 mars 2015 à 22 :17Z. Voir la figure 4.3 pour la trajectoire. 87
- Figure 4.6 Rétrotrajectoires HYSPLIT arrivant au centre du domaine STUDY à différentes altitudes à 5000 m (lignes vertes), 500 m (lignes bleues) et 100 m (lignes rouges), le 29 Mars, entre 02h00 AKDT et 22h00 AKDT, par bloc d'arrivée de 6 heures (Draxler et Hess, 1997). Pour chaque bloc d'arrivée (chacune des 6 sous-figures), la position géographique passée de la masse d'air (la carte, section du haut) ainsi que l'altitude en m correspondante (le profil vertical, section du bas) est représentée aux 6 heures par des points pour les 120 heures précédant l'arrivée au centre du domaine STUDY pour ce bloc d'arrivée. 89
- Figure 4.7 Éléments chimiques mineurs composant les aérosols en mode d'accumulation en μgm^3 dans la simulation SHIP (gauche) et NOSHIP (droite), à 3h30 AKDT (en haut) et 12h AKDT (en bas) moyenné dans la CLM dans le domaine STUDY. Les pourcentages indiquent la proportion que cet élément prend par rapport aux autres éléments mineurs. 91
- Figure 4.8 Évolution temporelle de la composition des éléments traces des aérosols en ppbv en mode d'accumulation le 29 mars 2015, moyenné dans la couche limite dans le domaine STUDY. SHIP est en ligne pleine et NOSHIP est en ligne pointillée. 94
- Figure 4.9 Évolution temporelle de la composition de l'air en SO_2 , O_3 , xylène, en radicaux OH et NO_3 , en NO, NO_2 , HNO_3 et pentoxyde d'azote le 29 mars 2015, moyenné dans la couche limite dans le domaine STUDY. SHIP en ligne pleine et NOSHIP en ligne pointillée. 96
- Figure 4.10 Évolution temporelle de l'hygroscopicité des aérosols selon leur classe de taille (BIN) en mode d'accumulation, moyenné dans la couche limite dans

le domaine STUDY, le 29 mars 2015. En ligne continue, le cas SHIP et en ligne pointillée, le cas NOSHIP. 98

Figure 4.11 Changement moyen de l'hygroscopicité des aérosols en mode d'accumulation (SHIP-NOSHIP) selon la fraction massique en NaCl initiale (NOSHIP), dans la CLM dans le domaine STUDY. Les classes de taille 6 et 7 sont moyennées ensemble en jaune, 4 et 5 en rouge et 2 et 3 en bleu. Les barres verticales représentent la dispersion des données (± 1 écart-type) pour la fraction massique de NaCl et le changement moyen de l'hygroscopicité choisi. 99

LISTE DES TABLEAUX

Tableau	Page
Tableau 1.1 Projection dans la variation des émissions de bateaux en Arctique entre 2004 et 2050 pour une croissance du trafic maritime moyenne (1), et pour une croissance élevée (2) (Peters et al., 2011).	5
Tableau 2.1 Taille des classes des aérosols calculés dans le module MOSAIC pour WRF-Chem en (Chapman et al., 2009).	20
Tableau 2.2 Composition chimique des aérosols calculés dans le module MOSAIC pour WRF-Chem ainsi que la masse volumique et l'hygroscopicité associée à l'élément chimique (Chapman et al., 2009).	20
Tableau 2.3 Résumé des simulations.....	27
Tableau 2.4 Schémas physiques utilisés dans le WRF pour simulations.	29
Tableau 2.5 Schémas chimiques utilisés dans le WRF-Chem pour les simulations.	31
Tableau 3.1 Propriétés des aérosols du mode d'accumulation dans la CLM dans le domaine SMALL.	50
Tableau 3.2 Extension verticale des nuages de la CLM dans les simulations ainsi que le rayon moyen des gouttelettes au sommet des nuages.	62
Tableau 3.3 Propriétés microphysiques moyennes des nuages dans les simulations pour toutes les données et les données polluées en comparaison des observations obtenues par la table 3 de Miles et al. (2000).	67
Tableau 4.1 Corrélations (spatio-temporelle) entre le nitrate et le xylène, ainsi que le sulfate et le xylène selon SHIP et NOSHIP, dans la CLM dans le domaine STUDY, le 29 mars 2015.	97
Tableau 4.2 Contribution massique des sels de mer face à l'interaction bateaux-hygroscopicité des aérosols selon la classe de taille (Bin) des aérosols en mode d'accumulation dans le domaine STUDY. Première ligne : fraction massique de NaCl dans un aérosol par rapport à la masse de l'aérosol.	

Deuxième ligne : corrélation entre le changement de l'hygroscopicité de l'aérosol entre les deux simulations et la fraction massique de NaCl. 97

LISTE DES ACRONYMES

AKDT	AlasKa Daylight Time
BPC	Bulk to Particle Conversion
CBMZ	Carbon bond mecanism, version Z
CLM	Couche Limite Marine
COV	Composés Organique Volatils
DMS	Sulfure de diméthyle
FINN	Fire INventory from Ncar
GES	Gaz à Effet de Serre
GFS	Global Forecast System
HYSPLIT	Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory
LES	Large Eddy Simulation (LES)
LWP	Liquid Water Path (Contenu en eau liquide)
MODIS	Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer
MOSAIC	MOdel for Simulating Aerosol Interaction and Chemistry
NC	Noyau de condensation
NG	Noyau glaciogène
PIA	Aérosol Inorganique Primaire
POA	Aérosol Organique Primaire
RRTMG	Rapid Radiative Transfer Model Global
SIA	Aérosol Inorganique Secondaire
SOA	Aérosol Organique Secondaire
TIROS-10	Television InfraRed Observation Satellites.
WRF-ARW	Weather Research and Forecasting model, Advanced Research WRF
WRF-ARW CHEM	WRF-ARW coupled with Chemistry

LISTE DES SYMBOLES

BC	Carbone-Suie
°C	Degré Celcius
µm	micromètres
µg	microgramme
Ar	Argon
CH ₄	Méthane
CO	Monoxyde de Carbone
CO ₂	Dioxyde de Carbone
g	gramme
H ₂	Dihydrogène
H ₂ S	Sulfure d'hydrogène
kg	kilogramme
km	kilomètres
m	mètres
N ₂	Diazote
N ₂ O	Oxyde nitreux
Ne	Néon
NH ₃	Ammoniac
NMHC	Hydrocarbures Non Méthaniques
NO	Oxyde d'azote
NO ₂	Dioxyde d'azote
NO ₃	Radical nitrate
NO ₃ ⁻	Nitrate
NO _x	Oxydes d'azote (NO+NO ₂)
N _T	Concentration en gouttelettes
O ₂	Dioxygène
O ₃	Ozone
OC	Carbone organique

OH	Radical hydroxyle (Oxyde d'hydrogène)
PM2.5, PM10	Particules fines de taille inférieure à 2.5 et 10 microns
s	seconde
Sc	Saturation critique d'activation
SO ₂	Dioxyde de Souffre
SO ₄ ²⁻	Sulfate
T	Température de l'environnement
W	watt
Z	Zoulou, Heure UTC
β	Hygroscopicité

RÉSUMÉ

Tout comme les autres activités anthropiques, les bateaux ont de multiples effets sur leur environnement. En injectant des gaz et des particules dans la couche limite, ils altèrent le spectre chimique des gaz de l'atmosphère et de ses aérosols, qui interagissent avec le bilan radiatif, la météorologie, la qualité de l'air et le climat. Dans certaines régions éloignées, où les masses d'air sont majoritairement vierges, les bateaux peuvent avoir un effet important sur leur environnement. Cette recherche a pour but de caractériser l'effet qu'ont les bateaux sur les nuages et le budget radiatif de l'atmosphère pendant le printemps boréal dans le golfe de l'Alaska, une région caractérisée par peu d'activité anthropique, sauf pour un passage fréquent de bateaux de croisière et industriels. Nous pensons que les gaz et les aérosols injectés dans la couche limite par les bateaux vont altérer substantiellement la composition chimique de l'air et des aérosols. Le nombre plus élevé de noyaux de condensation affectera les caractéristiques microphysique des nuages, en augmentant la concentration des gouttelettes d'eau liquide et en diminuant leur taille. Ces changements exerceront un forçage négatif sur les courtes longueurs d'onde et diminueront les précipitations. Pour valider cette hypothèse, le Weather Research and Forecasting Model, Chem (WRF-Chem) est utilisé. C'est un modèle pleinement couplé entre la microphysique et la chimie atmosphérique. Des simulations avec et sans émissions de bateaux sont comparées. Grâce à nos recherches, nous avons prouvé que les bateaux augmentent la concentration en dioxyde de soufre et en oxydes d'azote. La concentration en nitrates augmente substantiellement alors que le sulfate augmente en quantité moindre. La concentration en aérosols augmente significativement dans la couche limite. Étant donné la grande concentration en sels de mer dans la couche limite, l'hygroscopicité moyenne des aérosols se voit diminuée par les bateaux. La concentration en gouttelettes de nuage est augmentée et leur taille est diminuée, réduisant la taille des gouttelettes de pluie et le nombre de gouttelettes susceptibles de précipiter. Les bateaux exercent un forçage négatif sur les courtes longueurs d'onde. Finalement, l'effet qu'ont les bateaux sur la microphysique des nuages et le bilan radiatif s'est révélé comme étant particulièrement sensible aux conditions environnementales avant l'injection d'aérosols par les bateaux, particulièrement la pollution anthropique initiale, le contenu en sels de mer dans la couche limite et le contenu en eau liquide des nuages de la couche limite.

Mots clés : microphysique des nuages, effet des bateaux sur l'environnement, météorologie, WRF-Chem, qualité de l'air.

CHAPITRE I

INTRODUCTION ET REVUE DE LITTÉRATURE

Le climat des régions nordiques est très sensible aux changements environnementaux. Partant des températures extrêmes, des inondations et en passant par la fonte des glaces, les changements climatiques se font ressentir trois fois plus fortement dans ces régions qu'ailleurs dans le monde (Hansen et al., 2010). Selon la majorité des modèles climatiques, la température globale continuera à augmenter, et ce, peu importe le scénario d'émission anthropique futur (Chapman et Walsh, 2007). Pour cette raison, il est primordial d'améliorer nos connaissances sur les facteurs influençant le climat, les conséquences des changements climatiques et éventuellement leur prévention. La sensibilité des régions nordiques est influencée d'une part, par son fort albédo et d'autre part, par un rayonnement solaire faible aux basses élévations de l'astre au-dessus de l'horizon pendant l'hiver boréal. Ces caractéristiques rendent les nuages subpolaires et polaires importants pour le rayonnement, le bilan énergétique de la Terre et éventuellement le climat. En effet, durant la majorité de l'année à l'exception d'une courte période pendant l'été où le rayonnement solaire s'impose par de longues périodes d'ensoleillement, les nuages des régions polaires agissent principalement comme un agent d'effet de serre, absorbant le rayonnement infrarouge émis vers l'espace, le réémettant vers la surface et ainsi réchauffant les surfaces terrestres (Interi et al., 2002). Or, les nuages de moyennes et hautes latitudes sont mal représentés dans les modèles climatiques. Il est donc important de comprendre leur formation et leur sensibilité aux facteurs externes (Shupe, 2004).

La tendance des régions nordiques à se réchauffer a de multiples conséquences, autant sur l'environnement que sur l'écologie et l'économie de la région. En particulier, la couverture de glace est extrêmement sensible aux changements climatiques. En effet, la perte de la couverture de glace observée entre 1980 et 2010 est attribuable à l'augmentation de seulement 1 W m^{-2} dans le bilan radiatif net (Kwok, 2011). La diminution de la couverture de glace ouvre la région au transport maritime (Marelle et al., 2016) et à l'extraction des ressources (Kirtman et al., 2013; Tuccella et al., 2017). Un bon exemple de ces phénomènes est celui du passage du Nord-Ouest qui s'est ouvert complètement à notre connaissance pour la première fois en 2007, résultant aux premiers passages de brise-glaces (NSIDC, 2007). Au fil du temps, l'augmentation du territoire maritime dans les régions nordiques, résultant de la fonte des glaces, pourrait être la cause de l'augmentation drastique du transport maritime et de l'industrialisation (Peters et al., 2011).

La troposphère, la couche de l'atmosphère près de la surface, est constituée principalement des éléments gazeux suivants : diazote (N_2 ; 78%), oxygène (O_2 ; 20%), argon (Ar; 0.9%) et néon (Ne; 0.001 %). Elle contient également, en moins grande quantité, des gaz qui varient plus lentement comme le méthane (CH_4), le protoxyde d'azote (N_2O), le dihydrogène (H_2), le monoxyde et dioxyde de carbone (CO , CO_2). Il y a également des espèces avec une variation spatio-temporelle plus importante, parmi lesquelles se trouvent le dioxyde de soufre (SO_2) le sulfure d'hydrogène (H_2S), l'oxyde et le dioxyde d'azote (NO , NO_2), l'ozone (O_3), l'ammoniac (NH_3), ainsi que des radicaux tels que les hydroxyles (OH) et les nitrates (NO_3) (Seinfeld et Pandis, 2006). Le CO , CH_4 , le CO_2 et les composés sulfatés proviennent notamment de la combustion de biomasse (feux de forêt, volcans), d'autres espèces proviennent surtout de l'activité bactérienne (composés azotés) et certaines espèces sont produites directement dans la troposphère par des processus de photodissociation via l'ozone (O_3). La troposphère contient également en traces de fines particules solides ou liquides en suspension dans l'air; ce sont les aérosols. Leur taille et leur concentration varient

selon le milieu dans lequel ils se trouvent (basse ou haute atmosphère, pôles ou tropiques, milieu urbain, rural ou maritime) et les saisons. Les aérosols sont composés de multiples éléments chimiques. Parmi ces éléments, on retrouve entre autres du carbone-suie (BC), du carbone organique (OC), du sulfate (SO_4^{2-}), du nitrate (NO_3^-), des sels de mer et de la poussière terrigène. Parmi l'OC, certains aérosols sont des particules organiques primaires (POA pour *primary organic aerosols*) directement émises dans l'atmosphère et d'autres secondaires (SOA pour *secondary organic aerosols*) sont formés à partir de l'oxydation de composés organiques volatils (COV) (Bergametti et al., 1989). Les aérosols inorganiques quant à eux peuvent être émis directement (aérosols inorganiques primaires ou PIA) ou être le produit de réactions chimiques (aérosols inorganiques secondaires ou SIA). Les PIA peuvent provenir d'une multitude de sources telles que les volcans, la mer (les sels de mer), le sol nu ou les déserts (particules terrigènes) ou les feux (Andreae, 2007). Les aérosols, d'une taille allant de quelques nanomètres à plus de 100 micromètres (μm), sont décrits sous quatre modes de taille (Whitby 1978; Seinfeld et Pandis, 2006), soit :

- 1) Le **mode de nucléation**, de rayon $r < 0.01 \mu\text{m}$. Ce mode est principalement constitué d'aérosols secondaires, où les gaz se condensent en particules solides ou liquides suite à des réactions chimiques. Leur temps de vie est très court.
- 2) Le **mode d'Aitken** dont la taille est dans la marge $0.01 \mu\text{m} < r < 0.1 \mu\text{m}$. C'est dans ce mode que sont produits la plupart des aérosols secondaires.
- 3) Le **mode d'accumulation** est de taille $0.1 \mu\text{m} < r < 1 \mu\text{m}$. Ces aérosols sont créés à la suite de la coagulation des aérosols dans le mode d'Aitken. Les aérosols dans ce mode ne peuvent pas coaguler suffisamment rapidement pour se transformer dans le mode supérieur en taille, mais sont de trop petite taille pour que la sédimentation soit efficace. Son puits principal est le lessivage par les précipitations. Celles-ci sont majoritairement responsables de la formation de nuages et d'hydrométéores.

- 4) Le **mode grossier** (*coarse* en anglais), dont $r > 1\mu m$. Ce dernier mode se forme en général mécaniquement par le soulèvement du sol par le vent (particules terrigènes) ou bien lors de l'éclatement de bulles dans l'écume de la mer, formant des particules de sel de mer résiduelles.

Les SIA peuvent se former principalement de trois façons (Pruppacher et Klett, 1997). D'abord, ils peuvent se former par une conversion de gaz à particule, c'est-à-dire que les gaz se condensent en particules d'aérosols solides ou liquides, alimentant principalement le mode de taille de nucléation. Les SIA peuvent également se former par masse brute à particule (*bulk-to-particle conversion* – BPC). Cela arrive lorsque des gaz réagissent chimiquement au contact de particules préexistantes. Cette formation s'effectue principalement dans le mode grossier et en moindre proportion dans le mode d'accumulation. La 3^e façon de production est la formation à partir de solutés lors de l'évaporation d'une gouttelette d'eau nuageuse.

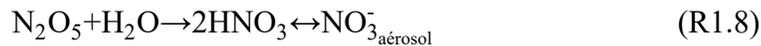
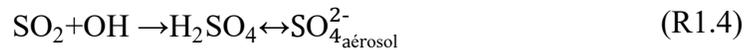
Une source importante de gaz et d'aérosols est l'activité anthropique, telle que les activités industrielles de transport et de combustion. En particulier, les bateaux émettent entre autres du BC, des OC, du SO₂, du CO et du CO₂, des hydrocarbures non méthaniques (NMHCs), des COVs et finalement des oxydes d'azotes (NO_x = NO + NO₂). Ces derniers sont responsables de la formation d'ozone et de nitrate (Corbett et al., 2010). Les bateaux, en émettant tous ces composés, ont un impact majeur sur la qualité de l'air. Mölders et al. (2010) ont démontré que la concentration moyenne du SO₂ pendant la saison touristique de 2006 dans la zone portuaire d'Anchorage en Alaska était multipliée jusqu'à 2000 fois par rapport à la concentration moyenne en basse saison touristique. À la suite d'études similaires (Possner et al., 2015; Lack et Corbett, 2012; Vutukuru et Dabdub, 2008), des régulations de la circulation maritime visant à réduire le taux d'émission de particules fines entrent peu à peu en vigueur (tableau 1.1). Peters et al. (2011) ont calculé un scénario d'émission des bateaux plausible pour 2050 et l'ont comparé aux émissions de 2004. Potentiellement, avec le temps, la réduction potentielle des émissions de certains aérosols se fera au profit de

l'augmentation des GES. Cela est dû à une augmentation du trafic maritime plus près du pôle, mais aussi à de meilleures régulations d'émissions et à un plus grand taux de combustion des moteurs, transformant plus efficacement les aérosols en gaz (Peters et al., 2011). Ces chercheurs sont arrivés à la conclusion que les émissions de SO₂ et de particules fines (PM_{2.5}) diminueraient de moitié, alors que les émissions de CO₂, NO₂, BC et OC augmenteraient de 10 à 300 % (tableau 1.1).

Tableau 1.1 Projection dans la variation des émissions de bateaux en Arctique entre 2004 et 2050 pour une croissance du trafic maritime moyenne (1), et pour une croissance élevée (2) (Peters et al., 2011).

Espèce	2050 ₁ – 2004	2050 ₂ – 2004
	2004	2004
CO ₂ , NO ₂ , CO, BC	300%	600%
OC	10%	20%
SO ₂ , PM _{2.5}	-50 %, -4%	-2%, 4 %

Étant donné que les bateaux sont une source majeure de NO, de NO₂ et de SO₂, les SIA tels que le SO₄²⁻ et le NO₃ sont fréquemment produits par les bateaux (Corbett et al., 2010), en passant par la formation des radicaux OH et NO₃. Les radicaux OH se forment grâce à la photolyse de l'ozone pendant le jour (réactions R1.1 et R1.2). La concentration du radical OH est donc maximale au pic solaire et elle suit le cycle diurne. Les radicaux NO₃, quant à eux, sont issus des oxydes d'azotes (NO_x) par la réaction R1.3 et ont un rôle important uniquement la nuit, étant très efficacement détruits le jour par photolyse. Dans l'atmosphère, le SIA SO₄²⁻ est principalement formé via l'oxydation du SO₂ par le radical OH et suit donc le cycle diurne (réaction R1.4). Le NO₃ est principalement formé via le NO₂ et les radicaux OH et NO₃. Il est formé de jour (réactions R1.5, 1.6) comme de nuit (réactions R1.7, R1.8). Les réactions chimiques R1.1 à R1.8 sont les suivantes (Seinfeld et Pandis, 2006) :



La vapeur d'eau se condense en gouttelettes ou en cristaux de glace dans l'atmosphère par le processus nommé la nucléation. Dans le contexte d'une masse d'air saturée possédant un volume fini, la nucléation requiert une transformation thermodynamique suivant le deuxième principe de la thermodynamique, c'est-à-dire que la réaction de nucléation doit se faire de façon spontanée et l'entropie totale de la masse d'air ne peut qu'augmenter. Puisque la tension de surface de la gouttelette en formation rajoute, dans le système, une composante énergétique inversement proportionnelle à la taille de la gouttelette et que la réaction de nucléation doit être isentropique, la nucléation des plus grosses gouttelettes sera préférentielle. La tension de surface agit alors comme une barrière énergétique face à la formation des gouttelettes d'eau ou de cristaux de glace à partir de vapeur d'eau dans l'atmosphère. Ce principe est nommé l'effet de courbure, ou de Kelvin (Pruppacher et Klett, 1997). La pression de vapeur saturante ne suffit donc pas pour qu'une gouttelette de nuage soit en équilibre thermodynamique avec son environnement, puisqu'elle requiert ainsi un rapport de saturation > 400 % pour

compenser l'effet Kelvin pour les gouttelettes de nuage dont la taille est typiquement observée dans les nuages de basses couches, soit près de $10\mu\text{m}$ (Miles et al., 2000). Le processus de nucléation d'une gouttelette d'eau, uniquement à partir de la vapeur, appelé la nucléation homogène, n'est donc pas accessible pour l'eau liquide, mais il est possible pour la formation de cristaux de glace sous une température inférieure à -38°C (Westbrook et Illingworth, 2011).

Les aérosols permettent d'abaisser la barrière d'énergie nécessaire à la nucléation. Ces derniers diminuent la tension de surface des gouttelettes en formation en diminuant l'effet de courbure et en augmentant le nombre de solutés (Pruppacher et Klett, 1997). Le processus de la nucléation d'une gouttelette sur une particule d'aérosol est appelé la nucléation hétérogène. Il est possible de déterminer la saturation $S(r)$ requise au-dessus d'une gouttelette de rayon r enrobant un aérosol partiellement soluble dont la fraction insoluble a un rayon de r_d par les équations de Köhler (équations 1.1 et 1.2). L'équation 1.1 représente une courbe dont son maximum est le seuil du rapport de sursaturation nécessaire à la création d'une gouttelette. Au-delà de ce point, nommé la « saturation critique d'activation (S_c) » (équation 1.2), la gouttelette tend naturellement à grossir par condensation (si la masse d'air est à saturation) et l'aérosol est alors dit « activé ». Il est à noter que la nucléation dépend de la composition chimique de l'aérosol, via l'hygroscopicité (β). L'équation de saturation à la surface d'une gouttelette et S_c peuvent s'écrire comme suit :

$$S(r) = 1 + \frac{A}{r} - \frac{\beta}{r^3 - r_d^3} \quad (1.1)$$

$$S_c = \frac{2}{\sqrt{\beta}} \left(\frac{A}{3 \cdot r_d} \right)^{\frac{3}{2}} \quad (1.2)$$

où r est le rayon de la gouttelette et r_d est celui de la portion non soluble de l'aérosol,

$\frac{A}{r} = \frac{3.3 \cdot 10^{-5}}{r}$ est le terme de courbure (aussi nommé Kelvin) et $\beta = \frac{4im_s}{3Ms}$ est le terme lié à

l'effet de dissolution du soluté (l'hygroscopicité).

Les aérosols susceptibles d'activer la nucléation d'une gouttelette d'eau sont appelés « noyaux de condensation » (NC) alors que ceux nécessaires à la formation d'un cristal de glace sont des « noyaux glaçogènes » (NG). Ainsi, l'injection anthropique de polluants affecte la formation des gouttelettes d'eau, non seulement en rajoutant des aérosols susceptibles d'être des NC et NG, mais aussi en changeant la composition chimique des aérosols déjà présents dans la masse d'air. La nucléation hétérogène est essentiellement responsable de la formation des gouttelettes de nuage dans l'atmosphère. Les observations montrent que les NC ont une forte variabilité spatio-temporelle dans l'atmosphère libre, mais sont rarement un facteur limitant dans la couche limite marine (CLM) (Martin et al., 1994; Heintzenberg et al., 2000). Les causes de cette variabilité sont multiples, notamment, les pluies fortes, une forte inversion de température dans la couche limite et la pollution anthropique (Terai et al., 2014; Berner et al., 2013). Contrairement aux NC, un NG doit être non-soluble, posséder des sites facilitant la nucléation des cristaux de glace et avoir une structure moléculaire similaire à celle de la glace, de telle sorte que seulement 0.001% à 0.1% seulement de toutes les particules d'aérosols peuvent effectivement agir en tant que NG (Fletcher, 1962; Rogers, 1998). Ces facteurs expliquent pourquoi il y a moins de NG que de NC dans l'atmosphère et que la présence d'eau surfondue dans les nuages est très fréquente à des températures de sommet de nuage au-dessus de -20°C .

Dans l'atmosphère, les nuages existent principalement sous 3 états de phase distincts : liquide, solide ou mixte. Les nuages de phase liquides sont constitués uniquement de gouttelettes d'eau liquide. Ces derniers sont observables dans l'atmosphère à toutes les températures au-dessus du point de congélation, voire même dans des états surfondus pouvant atteindre des températures aussi basses que -38°C , une température minimale limite à laquelle l'eau liquide peut subsister à l'état métastable avant de se transformer en glace sans apport énergétique supplémentaire (Pruppacher et Klett, 1997). Dans les

régions nordiques, les nuages d'eau liquide se retrouvent plus fréquents en été et principalement dans les basses et moyennes couches de l'atmosphère. Durant l'hiver en Arctique, ils ont une fréquence observée d'environ 10-20 % (Shupe, 2011) par rapport à l'ensemble des nuages.

Les nuages de glace sont composés entièrement d'eau gelée et ils se forment sous zéro degré Celsius. On les retrouve partout dans l'atmosphère aux températures sous zéro, mais ils dépendent aussi de la disponibilité des NG. Alors que les nuages de glace sont les plus fréquents en hiver, les nuages en phase mixte, composés des deux types d'hydrométéores, liquides et solides, sont plus fréquents d'avril à octobre dans les régions polaires et subpolaires (Shupe, 2011). La variabilité observée dans la phase des nuages est dictée par la sensibilité des conditions atmosphériques pour la formation des nuages mixtes. La tension de vapeur saturante de l'eau liquide étant supérieure à celle de la glace, la vitesse verticale, ainsi que le rapport NC/NG est critique pour déterminer la phase de nucléation et conséquemment le type de nuage (Korolev et Mazin, 2003).

La phase des nuages influence la météorologie et le climat. Pour un nuage ayant le même contenu en eau totale (liquide + glace), un nuage d'eau liquide aura un albédo plus grand qu'un nuage de glace, puisque le nuage d'eau liquide aura une concentration supérieure en petites gouttelettes (Shupe et Intreri, 2004, Prenni et al., 2007). Connaître le type de nuages ainsi que leurs propriétés microphysiques devient donc d'une importance capitale pour déterminer l'évolution du climat, puisque les erreurs sur les phases des nuages conduisent, par le calcul de transfert radiatif, à des erreurs importantes sur la température, les précipitations et en conséquence la majorité des autres variables météorologiques (Field et Heymsfield, 2015, Mülmenstädt et al., 2015). Une injection d'aérosols dans les nuages, qu'elle soit anthropique ou naturelle, peut donc changer la phase de l'eau des nuages ou la concentration de gouttelettes par l'effet des NC et NG et ainsi avoir un impact sur les simulations des modèles météorologiques et climatiques.

Les gouttelettes nuageuses dans un milieu maritime ont souvent un rayon inférieur à $20 \mu\text{m}$ et une concentration d'environ 50 cm^{-3} . Leur vitesse terminale de chute, sous 4 cm/s est souvent trop faible pour qu'elles précipitent et elles sont généralement maintenues en suspension dans l'air dû aux vents et à la turbulence (Pruppacher et Klett, 1997). Principalement, seuls les stratocumulus ayant une grande épaisseur ou un certain contenu en glace peuvent générer des précipitations. Effectivement, pour un nuage mixte, dans une situation de sursaturation par rapport à la glace, mais de sous-saturation par rapport l'eau liquide, les gouttelettes d'eau liquide s'évaporeront. La vapeur supplémentaire se condensera ensuite sur les cristaux de glace. Ce mécanisme, nommé le mécanisme de Bergeron, favorise alors les précipitations, en accroissant la taille des cristaux de glace jusqu'à ce qu'ils deviennent suffisamment gros pour précipiter, au dépit de l'eau liquide (Korolev et Mazin, 2003).

La formation des précipitations résulte de la collision multiple entre des gouttelettes ou des cristaux. Pour les nuages liquides, deux types de collision sont possibles : l'autocollection, caractérisée par la collection de deux hydrométéores de même type (gouttes de pluie ou gouttelettes nuageuses) pour former un hydrométéore de même type et l'autoconversion, où deux gouttelettes de nuage forment une goutte de pluie. La taille des gouttelettes doit être plus grande que $30 \mu\text{m}$ pour que la collection soit efficace (Devenish et al., 2012). La formation de la précipitation est donc particulièrement sensible au spectre de taille, à la concentration et la composition des aérosols dans la CLM, puisque ceux-ci peuvent altérer le diamètre moyen des gouttelettes et par conséquent les processus de collection (Mircea et al., 2000). Des injections d'aérosols résultant d'une activité anthropique, tel le passage d'un bateau, peuvent donc significativement altérer les processus de précipitations dans les stratocumulus marins. Par exemple, il a été observé que la bruine est parfois supprimée dans le sillage des bateaux (Ferek et al., 2000).

Pendant la majeure portion du 20^e siècle, l'impact des bateaux sur l'atmosphère était très peu connu, car il est difficile d'estimer les émissions totales qu'apporte la circulation maritime des bateaux, particulièrement dans des régions éloignées telles que les régions nordiques. Effectivement, le transport maritime est une industrie en constante évolution, dépendante de la météorologie, de l'économie, de la politique, mais aussi de la régulation des émissions des moteurs à combustion de ces bateaux, en constante évolution (Corbett et al., 2010). En 2005, contrairement aux autres types d'industries, les régulations en vigueur sont peu contraignantes et, jusqu'en 2010, rien n'obligeait les transporteurs à fournir avec exactitude aux autorités gouvernementales leurs taux d'émissions atmosphériques. Ces émissions, quoique parfois très locales, peuvent alors affecter la qualité de l'air et obstruer la visibilité, particulièrement dans des régions à fort transport naval et où les inversions de température sont fréquentes (Corbett et al., 2010; Mölders, 2010). Les émissions navales peuvent aussi avoir un impact sur le biote marin par les dépôts secs et humides des aérosols vers la surface, ce qui à long terme peut acidifier l'océan et affecter les écosystèmes aquatiques (Seinfeld, 1986, Endresen et al., 2003). En combinaison avec les puits de pétrole, les bateaux ajoutent des dépôts de BC sur la neige, ce qui contribue à la fonte de la calotte glaciaire et du couvert nival par une réduction de l'albédo de surface (Ødemark et al., 2012; ; Flanner et al., 2013).

Depuis 2017, les bateaux de plus de 300 tonnes doivent désormais fournir leurs vitesses, leur position géographique et leur type de combustible (Johansson et al., 2017). En dépit des études portant sur les conséquences qu'ont les bateaux sur la qualité de l'air (Mölders et al., 2010; Porter 2009), l'impact des émissions des bateaux sur la météorologie et le climat a été peu étudié. D'abord, en plus des gaz à effets de serre réchauffant l'atmosphère, les aérosols émis par les bateaux, tels que le BC, absorbent directement les courtes longueurs d'onde du soleil et réchauffent à leur tour la surface terrestre. Ce forçage est appelé le forçage radiatif direct des aérosols. Par exemple, l'effet radiatif direct du BC émis par le transport naval est estimé à $\sim 1.5 \frac{mW}{m^2}$, alors que

celui du transport routier est estimé à $\sim 45 \frac{mW}{m^2}$ (Balkanski et al., 2010). En réchauffant l'atmosphère, les aérosols baissent l'humidité relative ambiante, créant ainsi une diminution de la fraction nuageuse et du contenu en eau liquide intégré dans la colonne d'air (*Liquid Water Path*, LWP), entraînant un forçage radiatif secondaire. Ce forçage est appelé l'effet semi-direct des aérosols. Le forçage radiatif semi-direct d'origine anthropique est majoritairement positif (Ackerman et al., 2000), mais il est fortement dépendant du type d'aérosol et d'injection dans la couche limite (Johnson et al., 2004). À notre connaissance, cet effet n'a pas été quantifié pour les émissions de bateaux.

L'effet des bateaux sur l'atmosphère a été étudié pour la première fois par Conover (1966) à l'aide du satellite TIROS-10, en observant, dans des conditions particulières, de longues traînées de condensation se formant à la suite du panache de fumée dans le sillage de navires, maintenant communément appelés en anglais les *shiptracks*¹. Il a été déterminé que les *shiptracks* sont plus facilement visibles dans le domaine de l'infrarouge proche, particulièrement dans la bande de la vapeur d'eau à $3.7 \mu m$ (Coakley, 1987). Cette découverte suggère que les bateaux, en changeant la concentration des aérosols, donc de NC, peuvent avoir un effet sur le bilan radiatif en augmentant la fraction nuageuse et en modifiant la taille et la concentration des gouttelettes de nuage. Cet effet est un effet bien connu des aérosols et se nomme le premier effet indirect des aérosols sur le rayonnement solaire ou aussi nommé l'effet Twomey (Twomey, 1977). De plus, la réduction de la taille des gouttelettes réduit les processus d'autoconversion, donc de formation de la précipitation. Cela conduit éventuellement à augmenter le contenu en eau du nuage et de sa durée de vie, exerçant un forçage radiatif négatif sur le rayonnement solaire (Albrecht, 1989). Ceci est appelé le deuxième effet indirect des aérosols ou l'effet Albrecht.

¹ Les *shiptracks* désignent de façon spécifique les traînées de condensation créées à la suite du passage des bateaux. Par souci d'uniformité, ce terme anglais sera utilisé tout au long de ce mémoire.

L'effet indirect qu'ont les bateaux sur les aérosols et sur les nuages a été confirmé d'abord par Ferek et al. (1997), en prouvant que les bateaux peuvent supprimer les précipitations de bruine provenant des stratocumulus marins. Dans la même veine, le *Monterey Area Ship Track Experiment* (Durkee et al., 2000) a permis de déterminer les propriétés microphysiques des *shiptracks*. L'équipe de recherche est arrivée à la conclusion que les conditions pour la formation de ces nuages sont plutôt restrictives, soit : de l'air froid et quasi saturé, une couche limite marine verticalement mince et bien mélangée, préalablement vierge et surmontée d'une forte inversion. En tout, on estime que l'ensemble des effets indirects des aérosols conduit à un forçage radiatif allant de -0.3 à $-1.8 \frac{W}{m^2}$ (Haywood et Boucher, 2000). L'incertitude de ce forçage réside surtout dans la différenciation des effets semi-direct, direct et indirect des aérosols sur les nuages et sur le bilan radiatif. Dans cette optique, Marelle et al. (2016) ont prouvé que le bilan radiatif total (direct + indirect + semi-direct) qu'appliquent les émissions anthropiques maritimes de la mer de Norvège est de $-1.8 \frac{W}{m^2}$. Ødemark (2012) ont estimé que l'effet total des bateaux sur l'atmosphère apporte un forçage net négatif, mais que les effets des bateaux sont partiellement équilibrés par les émissions de BC des plateformes pétrolières et le dépôt du BC sur la neige réduisant l'albédo de surface. Marelle et al. (2018) ont démontré que les émissions de feux de biomasse et ceux d'origines anthropiques arrivant en Arctique produisent un forçage radiatif semi-direct et indirect de $-2.1 \frac{W}{m^2}$, alors que celui appliqué localement par les bateaux est présentement négligeable, mais qu'il sera de $-0.8 \frac{W}{m^2}$ vers 2050 à la suite de l'augmentation anticipée du trafic maritime. Par ailleurs, de meilleures réglementations et une plus grande efficacité de combustion des moteurs favorisent une réduction du taux d'émission d'aérosols et une augmentation du taux d'émission des gaz à effet de serre (GES) (tableau 1.1, Peters et al., 2011; Gligen, 2018). Progressivement, l'augmentation du trafic maritime et des émissions exerçant un effet refroidissant pourrait donc être compensée par un réchauffement dû aux émissions des GES.

Même si l'effet net des émissions de bateaux sur le bilan radiatif est négatif, la complexité et la non-linéarité des interactions aérosols - nuages rendent la catégorisation de l'effet des bateaux très incertain. Beaucoup d'effets entrent en compétition et tendent à inhiber l'effet net. Par exemple, dans un nuage mixte, l'augmentation des aérosols et de NC réduit le rayon des gouttelettes par l'effet Twomey, diminuant l'agrégation cristaux - gouttelettes, mais une concentration suffisante de NG dans les aérosols ajoutés suffira pour amorcer la glaciation du nuage et l'accrétion de type cristaux-cristaux, via le mécanisme de Bergeron (Korolev et Mazin, 2003). De cet effet, il a été noté que les bateaux augmentaient la présence de glace de 19 % dans les nuages en phase mixte (Christensen et al., 2014). L'impact des aérosols sur les effets indirects est autant dépendant de la distribution de taille des aérosols (souvent supposée dans les modèles) que de leur concentration (Chen et al., 2012; Wang, 2011). De plus, Wang (2011) a prouvé que l'injection d'aérosols dans des stratocumulus marins engendrait une plus forte réponse lorsqu'il y a un nuage non-précipitant avec un fort contenu en eau, et que la réponse des nuages aux aérosols dépendait aussi de la méthode d'injection; soit par injection directe, par de longues traînées ou par émissions diluées dans toute la maille d'un modèle utilisé. En utilisant les données satellitaires du *Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer* (MODIS), Chen et al. (2012, 2015) ont montré que l'effet des *shiptracks* se faisait sentir surtout dans les nuages de type cellules ouvertes, en augmentant significativement l'albédo, le contenu en eau liquide et l'altitude du sommet des nuages, mais que, dans 30 % des cas, dans les nuages de type cellules fermées, l'albédo diminuait. Haywood et Boucher (2000) ont également noté une variation dans l'altitude des nuages associée aux effets indirects des aérosols. Finalement, les émissions de bateaux peuvent être transportées à des centaines de kilomètres de leur point d'émission (Eyring et al. 2010). En fonction de leur stabilité chimique et des conditions environnantes, ils peuvent donc perturber la météorologie à plus long terme (Peters et al., 2011). Ici, seuls les principaux effets ont été soulevés alors que l'effet global des bateaux relève probablement d'une multitude d'effets non linéaires et plus complexes. Vu la

complexité des effets non linéaires et du climat, sachant que, fort probablement, les bateaux exercent un forçage radiatif négatif et diminuent les précipitations, il est pertinent de se demander quels processus dominant ces impacts.

Le golfe de l'Alaska et les Aléoutiennes se démarquent par leur bonne qualité de l'air. Sauf pour un certain bruit de fond, principalement dû aux transports atmosphériques de grandes échelles, l'air de cette région est relativement faible en concentration de polluants. Cela contribue à rendre la région particulièrement sensible aux perturbations anthropiques telles que les bateaux. Avec la croissance économique, cette région se situe près d'un grand corridor de transport naval assurant un pont commercial entre l'Asie et l'Amérique du Nord. Mölders et al. (2010) ont noté que lors de la saison touristique en Alaska, la visibilité chutait jusqu'à 30 % dans les ports et entre 15-20 % sur les routes maritimes. Cependant, l'effet qu'ont les bateaux en Alaska sur la microphysique des nuages et sur le bilan radiatif est peu connu. La grande fréquence de fortes dépressions arrivant en Alaska (Mesquita et al., 2010) apporte un vaste éventail de conditions météorologiques. Le sud de l'Alaska, de par sa position géographique à 61° Nord, possède un ensoleillement allant de 19h00 en été à 5h30 en hiver. Sachant que l'effet des bateaux est mieux connu durant l'été et moins durant l'hiver pendant les périodes de faibles insulations, le printemps est une saison particulièrement intéressante à étudier puisqu'elle représente la transition entre l'hiver et l'été, avec un plus faible ensoleillement par rapport à l'été, mais qui possède tout de même un trafic maritime en cours d'intensification. Dans ce contexte, la connaissance limitée de l'impact des nuages sur le climat dû à de nombreuses approximations dans les modèles, notamment dans le paramétrage des interactions entre la microphysique des nuages, les aérosols et la chimie, est un facteur rendant difficile la caractérisation de l'impact de l'homme sur l'environnement.

Le climat en mutation, l'augmentation du trafic maritime, leurs émissions près de la surface dans une région originellement peu polluée et la difficulté des modèles à

représenter cette réalité, sont à l'origine de ce projet de maîtrise. Plus spécifiquement, la question posée initialement est la suivante : est-il possible qu'une petite perturbation dans la concentration des aérosols, tels que le passage de bateaux, affecte les caractéristiques des nuages au point d'avoir un effet significatif sur la composition chimique de l'air, le bilan radiatif et les précipitations? Pour l'aborder, notre étude se concentrera plus spécifiquement sur l'effet indirect des bateaux sur la microphysique des nuages, se distinguant d'autres études englobant les effets radiatifs totaux. Les modèles régionaux sont des outils adaptés pour ce projet, puisqu'ils permettent de calculer les interactions entre la chimie, les aérosols, les nuages et le rayonnement à des échelles fines (< 10 km). Ainsi, le modèle *Weather Research and Forecasting model* (WRF) (Skamarock et al., 2008) sera utilisé dans ce projet, afin de répondre à l'objectif de cette recherche, soit de mieux connaître l'impact du transport maritime sur l'atmosphère, particulièrement sur les nuages en phase liquide dans le golfe d'Alaska au printemps.

Ce mémoire se divise en 5 sections. Le chapitre 1 fait une rétrospective et une mise en contexte du sujet. Le chapitre 2 s'attarde à la méthodologie utilisée pour atteindre nos objectifs. Le chapitre 3 présente en premiers lieux une étude d'impact des bateaux sur la région des îles Aléoutiennes, entre le 15 et le 30 mars 2015, puis il se concentre sur les facteurs augmentant ou diminuant les impacts de ces bateaux. Le chapitre 4 a pour but d'analyser une journée particulière de la période simulée, celle du 29 mars 2015, afin d'évaluer la performance du modèle vis-à-vis des observations disponibles ainsi que d'analyser avec plus de précisions les processus impliqués dans la formation des aérosols. Finalement, le dernier chapitre apporte une discussion plus générale et une conclusion sur ce projet.

CHAPITRE II

MÉTHODOLOGIE

L'analyse de l'effet des bateaux sur l'atmosphère requiert la simulation météorologique de l'atmosphère. La comparaison de simulations météorologiques effectuées avec et sans émissions de bateaux afin d'extraire les impacts des bateaux sur l'atmosphère est la méthodologie principale utilisée dans ce mémoire. Afin de bien représenter la chimie et la microphysique atmosphérique tout en prenant en compte la variabilité spatio-temporelle des émissions des bateaux, il est essentiel d'utiliser un modèle régional à haute résolution. La résolution des modèles globaux ne permet pas de résoudre de façon explicite la microphysique des nuages, alors que les simulations à fine échelle comme les Large Eddy Simulation (LES) demandent une puissance de calcul trop élevée.

Le modèle *Weather Research and Forecasting Advanced Research* (WRF-ARW) est utilisé dans cette étude. C'est un modèle météorologique disposant de nombreuses options. Il est utilisé, modifié et mis à jour par une vaste communauté scientifique (Skamarock et al., 2008). Il permet aux chercheurs d'effectuer des simulations météorologiques régionales dans des cas idéalisés ou réalistes et il possède de nombreux modules permettant la sélection de multiples paramétrisations. Puisque notre étude nécessite de prendre en compte les interactions entre la chimie, la microphysique et la radiation, les options sélectionnées ont été choisies en conséquence. Le module de chimie atmosphérique couplé en ligne, WRF-Chem (Grell et al., 2005), est utilisé pour calculer les réactions chimiques sous forme aqueuse et gazeuse et l'évolution physico-chimique des aérosols. Son avantage réside dans son couplage entre la microphysique,

la chimie et la radiation, bien adapté à notre cas d'étude, puisqu'il permet de calculer l'effet radiatif direct, semi-direct et indirect des aérosols et des nuages, en fonction de la composition chimique interne des aérosols émis ou formés de façon secondaire par les bateaux. Ce modèle a été utilisé et validé de multiples fois en Arctique (Sessions et al., 2011), en Amérique du Nord (Tessum et al., 2015) et pour simuler l'impact des bateaux dans l'atmosphère (Mölders, 2010; Porter, 2009). Le mécanisme chimique choisi pour la réactivité chimique gazeuse est le *Carbon Bond Mechanism*, version Z (CBM-Z) (Zaveri et Peters, 1999). Pour les aérosols, le module choisi est le *MOdel for Simulating Aerosol Interaction and Chemistry* (MOSAIC) (Zaveri et al., 2008). Le schéma microphysique sélectionné est Morrison (Morrison et al., 2009), couplé avec celui de MOSAIC à l'aide des paramétrisations d'Abdul-Razzak et al (1998), idéal pour catégoriser l'effet des aérosols des bateaux sur les stratocumulus marins.

La première section de ce chapitre s'attardera donc à décrire le modèle WRF-Chem ainsi que les schémas chimiques (CBM-Z), d'aérosols (MOSAIC) et de microphysique des nuages (Morrison) et son couplage avec MOSAIC. La deuxième section décrira les expériences menées avec WRF-Chem et les bases de données d'émission utilisées. Par la suite, la troisième section s'attardera sur les données d'observations utilisées au courant de ce mémoire afin de valider les expériences. La quatrième section décrit les différentes étapes de post-traitement utilisées pour l'extraction des signaux microphysiques et chimiques.

2.1 Outil de modélisation : WRF-Chem

Le modèle WRF utilise les équations d'Euler compressibles et non hydrostatiques (Ooyama, 1990). Les équations sont en coordonnées verticales « *Eta* » (Laprise, 1992). La discrétisation temporelle est basée sur le schéma de Runge-Kutta (Skamarock et Klemp, 1992) et la discrétisation spatiale est basée sur *Arakawa C70 grid staggering*

(Skamarock et al., 2005, 2008). Un schéma de 5^e ordre est utilisé pour l'advection horizontale et 3^e ordre pour l'advection verticale.

Le module WRF-Chem est couplé avec la dynamique et utilise les mêmes grilles, pas de temps et schémas d'advections. La version du modèle utilisé est le *PolarWRF-Chem 3.8.1*, une version préalablement adaptée aux régions polaires, puis modifiée au LATMOS à Paris. Elle est décrite et utilisée dans une étude de l'impact des émissions de bateaux dans les régions nordiques (Marelle et al., 2017, 2018).

2.1.1 Description de CBM-Z-MOSAIC

Le mécanisme CBM-Z (Zaveri et Peters, 1999) calcule plus de 237 réactions chimiques pour 73 espèces gazeuses, mais n'inclut pas la formation des SOA. Les concentrations de CO₂ et de CH₄ ne sont pas calculées dans le modèle, leur concentration étant considérée comme étant constante. CBM-Z est couplé à MOSAIC pour permettre le calcul de l'évolution physico-chimique des aérosols.

Le calcul de la formation et de la transformation physico-chimique des aérosols demande beaucoup de temps de calcul en conséquence des nombreuses espèces chimiques et de leur taille variable. Dans la littérature, deux manières de calculer la concentration en aérosols et leur composition existent : le mélange externe, qui considère que chaque taille de particule est associée à une composition chimique simple (un seul composé) et le mélange interne, qui suppose que toutes les particules de même taille ont la même composition chimique. Dans MOSAIC, la composition chimique de chacune des 8 classes de taille d'aérosols est calculée en mélange interne. La taille de chacun des 8 types d'aérosols varie entre 0.39 et 10 µm et est résumée dans le tableau 2.1 (Chapman et al., 2009). Les espèces chimiques suivantes sont considérées: SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺, BC, Na, poussières (terrigènes et les autres inorganiques), H₂O et les OC (tableau 2.2). La concentration massique de toutes ces espèces chimiques est calculée,

autant pour les aérosols interstitiels et activés, rendant les coûts de calculs très élevés nécessitant une simulation régionale à une résolution modérée. La nucléation des aérosols se fait dans la classe de taille 1 et elle est calculée à l'aide du schéma H₂SO₄-H₂O de Wexler et al. (1994). La coagulation des aérosols et la chimie aqueuse dans les nuages sont basées selon Jacobson et al. (1994) et Fahey et Pandis (2001).

Tableau 2.1 Taille des classes des aérosols calculés dans le module MOSAIC pour WRF-Chem en (Chapman et al., 2009).

	BIN 1	BIN 2	BIN 3	BIN 4	BIN 5	BIN 6	BIN 7	BIN 8
Diamètre Minimum (µm)	0,039	0,078	0,156	0,31	0,625	1,25	2,5	5
Diamètre Maximum (µm)	0,078	0,156	0,313	0,63	1,25	2,5	5	10

Tableau 2.2 Composition chimique des aérosols calculés dans le module MOSAIC pour WRF-Chem ainsi que la masse volumique et l'hygroscopicité associée à l'élément chimique (Chapman et al., 2009).

	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	CO ₃ ²⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	Ca ⁺	OC	BC	Poussière
Masse volumique (µg /m ³)	1,8	1,8	2,2	2,6	1,8	2,2	2,6	1	1,7	2,6
Hygroscopicité	0,5	0,5	1,2	0,1	0,5	1,16	0,1	0,2	10 ⁻⁶	0,14

2.1.2 Description du schéma de microphysique des nuages

Le schéma de Morrison (Morrison et al., 2005) est un schéma à double moment, c'est-à-dire qu'à la fois la concentration en nombre d'hydrométéores sous la forme de l'eau, de la glace nuageuse, de la pluie, de la neige et du grésil ainsi que leur rapport de mélange massique respectifs sont sous forme de variables prédictives. Les schémas à double moment améliorent grandement le calcul des processus microphysiques et le calcul radiatif contrairement aux schémas limités à simple moment (Meyers et al., 1997; Morrison et al., 2005). L'ensemble de la description du schéma de Morrison adapté pour le WRF et utilisé dans ce projet est décrit dans Morrison et al. (2009), basé sur le schéma initial décrit par Morrison et al. (2005).

La distribution de taille $N(D)$ des hydrométéores ainsi que des gouttelettes et cristaux de nuages, sous forme de distribution gamma, est dérivée selon les observations de Martin et al. (1994) (équation 2.1). Pour chaque type d'hydrométéore, elle est fonction de diamètre D , de la concentration totale en hydrométéores N_t , de la densité de l'air ρ_{air} , de la densité de l'eau ρ_w , ainsi que des paramètres de taille (μ) et de pente (λ), qui dépendent de ρ_{air} , de N_t et du rapport de mélange du type d'hydrométéore. Le paramètre de taille (μ) vaut zéro pour toutes les espèces sauf les gouttelettes de nuage. Il est fonction de N_t pour ces dernières. Ce schéma microphysique restreint la valeur du rayon des gouttelettes de nuages entre 2 et 62 μm . La moyenne du diamètre des hydrométéores et le diamètre effectif sont respectivement calculés par les équations 2.2 et 2.3. Le calcul des tendances microphysiques évolutives, dont N_t ainsi que le calcul de la nucléation hétérogène et homogène de glace nuageuse sont décrits dans Morrison et al. (2005). Pour le schéma choisi, seule l'activation des gouttelettes des gouttelettes de nuages est couplée avec la chimie. On estime dans cette étude qu'il y a une faible occurrence de nuages en phase de glace dans la CLM dans le domaine pour la saison sélectionnée (Shupe, 2011, voir les sections suivantes). Le couplage entre la chimie et l'activation des gouttelettes de nuage se fait à l'aide du schéma décrit par Abdul-Razzak

et Ghan (1998, 2000, 2002), adapté pour le WRF-Chem. La suite de la section se concentrera à décrire le couplage et les algorithmes nécessaires à la compréhension du couplage avec l'eau liquide.

$$N(D) = N_t * \frac{\lambda}{\Gamma(\mu+1)} * D^\mu e^{-\lambda D} \quad (2.1)$$

$$\bar{D} = \frac{\int_0^\infty D * N_t * \frac{\lambda}{\Gamma(\mu+1)} * D^\mu e^{-\lambda D} dD}{\int_0^\infty N_t * \frac{\lambda}{\Gamma(\mu+1)} * D^\mu e^{-\lambda D} dD} = \frac{\mu+1}{\lambda} \quad (2.2)$$

$$D_e = \frac{\int_0^\infty D^3 * N_t * \frac{\lambda}{\Gamma(\mu+1)} * D^\mu e^{-\lambda D} dD}{\int_0^\infty D^2 * N_t * \frac{\lambda}{\Gamma(\mu+1)} * D^\mu e^{-\lambda D} dD} = \frac{\Gamma(\mu+4)}{\Gamma(\mu+3)} \left(\frac{\lambda}{2}\right) \quad (2.3)$$

Le schéma d'Abdul-Razzak et Ghan (1998) calcule le nombre d'aérosols activés en hydrométéores en fonction des paramètres physico-chimiques des aérosols ainsi que de la masse d'air. De plus, le schéma d'Abdul-Razzak (1998) calcule la saturation maximale atteinte d'une parcelle d'air en ascension adiabatique S_{max} selon l'équation suivante :

$$S_{max} = \frac{S_m}{\left(f(\sigma) * \left(\frac{\zeta}{\eta}\right)^{\frac{3}{2}} + g(\sigma) * \left(\frac{(S_m)^2}{\eta+3\zeta}\right)^{\frac{3}{4}} \right)^2} \quad (2.4)$$

où $g(\sigma)$ et $f(\sigma)$ sont des fonctions de l'écart-type de la distribution σ . ζ, η sont des fonctions du terme de Kelvin, de la vitesse d'ascension, de la diffusion de la chaleur et de l'humidité et de N_t . S_m est la saturation critique d'activation pour le rayon moyen des aérosols r_m conformément aux équations de Köhler (équations 1.1 et 1.2) et est décrit par l'équation suivante :

$$S_m = \frac{2}{\sqrt{\beta}} \left(\frac{A}{3r_m} \right)^{\frac{3}{2}} \quad (2.5)$$

où A est le terme de courbure et β est l'hygroscopicité de la distribution d'aérosol, fonction du coefficient osmotique, de la masse et de la composition de l'aérosol et du nombre d'ions. Le paramètre β est le seul paramètre permettant le couplage entre la microphysique des nuages et la chimie des aérosols. Le calcul de β pour chaque classe d'aérosol est une pondération volumique de l'hygroscopicité de l'aérosol selon la composition de l'espèce (tableau 2.2) et est décrit par l'équation 2.6, où i représente l'espèce du tableau 2.2 et C_i est la concentration massique de l'espèce en question. Le calcul de la saturation maximale est plus complexe avec MOSAIC, puisque les aérosols possèdent 8 classes de composition chimique et de taille différente (tableaux 2.1 et 2.2), ainsi donc, chaque classe contient une saturation critique d'activation différente. La solution de Abdul-Razzak et Ghan (2002) pour ce type de distribution complexe d'aérosols est d'utiliser une sursaturation critique d'activation effective (S_e) au lieu de moyenne (équation 2.7). Chaque classe i assume une fonction delta ($\sigma = 1$), une saturation S_i et une concentration d'aérosols N_i . S_{max} est maintenant calculé par l'équation 2.8. La fraction d'activation massique $f_{m,i}$ et en nombre $f_{n,i}$ pour chaque classe sont déterminées par l'équation 2.9, comparant la sursaturation maximale à la sursaturation critique de l'aérosol sec ayant le plus petit et le plus grand rayon de chaque classe i ; $S_{c,min,i}$ et $S_{c,max,i}$ respectivement (équation 2.9). Ces équations s'écrivent comme suit:

$$\beta = \frac{\sum_i \frac{C_i}{\rho_i} \beta_i}{\sum_i \frac{C_i}{\rho_i}} \quad (2.6)$$

$$S_e = \left(\frac{\sum_{i=1}^8 N_i}{\sum_{i=1}^8 \left(\frac{N_i}{S_i} \right)} \right)^{\frac{3}{2}} \quad (2.7)$$

$$S_{max} = \frac{S_e}{\left(0.5 * \left(\frac{\zeta}{\eta} \right)^{\frac{3}{2}} + g(\sigma) * \left(\frac{(S_e)^2}{\eta + 3\zeta} \right)^{\frac{3}{4}} \right)^2} \quad (2.8)$$

$$\begin{aligned}
& \text{Si } S_{\max} < S_{c,\text{rin},i} : f_{n,i} = f_{m,i} = 0 \\
& \text{Si } S_{\max} > S_{c,\text{rmax},i} : f_{n,i} = f_{m,i} = 1 \\
& \text{Si } S_{c,\text{rmax},i} < S_{\max} < S_{c,\text{rmin},i} : f_{n,i} = \frac{\ln\left(\frac{S_{\max}}{S_{c,\text{rmin},i}}\right)}{\ln\left(\frac{S_{c,\text{rmax},i}}{S_{c,\text{rmin},i}}\right)}, f_{m,i} = \frac{r^* - r_{\text{max},i}^3}{r_{\text{max},i}^3 - r_{\text{min},i}^3}
\end{aligned} \tag{2.9}$$

où r^* est le rayon critique d'activation correspondant à la sursaturation maximale calculée à partir de l'équation 2.8.

2.2 Configuration des simulations

Les caractéristiques spatio-temporelles des simulations sont résumées dans le tableau 2.3. La période sélectionnée est du 15 au 30 mars 2015. L'année sélectionnée est limitée à la disponibilité des données sur les émissions de bateaux (voir Section 2.2.2). Il a été démontré que le maximum d'effet des bateaux sur la radiation est en été (Marelle et al., 2016; Ødemark, 2012). Cependant, la période recherchée dans notre étude doit être dans un moment où la fraction nuageuse est maximale, puisque l'intérêt de l'étude est surtout centré sur la modification des propriétés microphysique des nuages plutôt que l'augmentation ou l'inhibition de la fraction nuageuse, d'où la préférence du mois de mars. Le risque d'y voir passer une dépression est fort et la variabilité dans la direction des vents y est grande, donnant un vaste éventail de conditions météorologiques. Deux expériences de simulation sont effectuées. La première, permettant de voir l'effet général des bateaux dans la région des Aléoutiennes, porte sur la période du 15 au 30 mars 2015. Elle permet de déterminer l'étendue de l'effet des bateaux sur les nuages ainsi que leurs conditions favorables. Elle fait l'objet du chapitre 3. La deuxième se concentre sur une étude de cas pour le 29 mars 2015, permettant de capturer l'impact qu'ont les bateaux sur la composition chimique de l'atmosphère et de valider le modèle à l'aide d'observations in situ. Elle fait l'objet du chapitre 4. La méthodologie, pour les deux expériences, consiste à effectuer des simulations avec et sans bateaux, afin d'en extraire des différences

moyennes et instantanées. Pour les deux expériences, le domaine, sélectionné suite à une analyse de la trajectoire des bateaux, se situe au sud de l'Alaska (figure 2.1). On observe que les bateaux ont deux trajets principaux, soit un corridor Vancouver-Asie et un autre Californie-Asie. La variabilité d'émission est dépendante de la météorologie : les bateaux ont tendance à éviter les tempêtes et les émissions sont proportionnelles à la direction des vagues et du vent (Jalkanen et al., 2018). Ainsi, on a déterminé que pour les deux expériences, il faut d'abord réaliser 2 simulations sur un grand domaine (BIG), du 10 au 30 mars 2015, qui sont utilisées comme pilote unidirectionnel pour les expériences sur les petits domaines nommés SMALL et STUDY) à plus haute résolution. Ces plus petits domaines varient selon les deux expériences décrites dans les prochains paragraphes. Les simulations pilotes sont décrites comme suit :

Une simulation sur le domaine BIG est effectuée avec des émissions de bateaux (BIG_SHIP) et l'autre sans émissions de bateaux (BIG_NOSHIP) (figure 2.1, tableau 2.3). Les données météorologiques initiales, frontières et de surface proviennent de *National centers for environmental Prediction - Global Forecast System - Final Analysis* (NCEP-GFS-FNL, NCEP, 1999), à une résolution de 1x1 degrés (0.5x0.5 pour la surface), 26 niveaux verticaux et sont fournis au modèle WRF toutes les 6 heures. La troposphère libre est nudgée² à ces réanalyses pour la température, les vents l'humidité. La résolution spatiale de la simulation sur le domaine BIG est de 20 km X 20 km avec une résolution verticale de 50 niveaux, restreints en deçà de 50 hPa. Le pas de temps est de 120 secondes avec une période de *spin-up*³ répartie entre le 10 et 15 mars 2015. L'utilisation de la paramétrisation sous-maille des cumulus de KF-CuP (*Kain-Fritsch + cumulus potential scheme*) (Berg et al., 2015) est requise, puisque la

² Ici, nudgée vient du mot anglais nudging, qui signifie que les données de troposphère libre sont guidées vers les valeurs des réanalyses pour éviter un trop gros écartement avec la réalité.

³ On réfère dans ce mémoire le terme *spin-up* comme étant le terme anglais définissant le temps de simulation utilisé afin d'atteindre la stabilité numérique dans la simulation.

résolution spatiale excède la résolution minimale pour résoudre explicitement les nuages convectifs. De plus, la résolution temporelle excède la résolution minimale pour adéquatement résoudre la microphysique des nuages établie d'environ 10s (Morrison et al., 2005).

La première expérience, dans le chapitre 3, se concentre sur deux simulations sur le domaine SMALL. Elles sont nommées SHIP et NOSHIP (figure 2.1, tableau 2.3). Comme décrit précédemment, elles seront pilotées par BIG_SHIP et BIG_NOSHIP respectivement, de façon unidirectionnelle. Pour ces simulations, le domaine SMALL sera centré au point d'intersection des deux corridors de trafic maximal maritime, dans les Aléoutiennes (figure 2.1, tableau 2.3). SMALL sera donc centré sur les Aléoutiennes, fournissant un large contraste entre le sud et le nord. Effectivement, alors que le sud de ce domaine sera pollué par les bateaux, le nord sera plutôt caractérisé par l'absence de bateaux, permettant de différencier les effets directs des bateaux versus le bruit de fond causé par ceux-ci à long terme. La résolution de 4 X 4 km et un pas de temps de 24 secondes sont suffisants pour capturer l'ensemble des effets indirects, mais on ne pourra pas résoudre les phénomènes de petites échelles comme les tourbillons de la turbulence. Le module KF-CuP (servant à paramétrer les cumulus de sous-échelle) est désactivé dans ce domaine pour éviter la double production de nuages, mais la paramétrisation sous-maille de la turbulence est conservée. Ces simulations possèdent la même période et *spin-up* que ceux des pilotes. Une zone de relaxation de 5 points de grilles sera utilisée sur les bords latéraux du domaine de simulation.

Pour la deuxième expérience, soit l'étude de cas du chapitre 4, les simulations sont effectuées de la même façon que les SHIP et NOSHIP du chapitre 3, avec la même résolution, et les calculs se déroulent du 27 Mars, 00Z au 30 mars 23 :59Z. Elles se nomment également SHIP et NOSHIP et se trouvent sur un petit domaine centré un peu plus au sud-est que SMALL, nommé STUDY (figure 2.1). La position du petit domaine a été déterminée à la suite d'une analyse quotidienne des simulations SHIP et

NOSHIP. Nous estimons qu'un *spin-up* du 27 mars 00Z au 28 mars 12Z est suffisant, étant donné que la simulation pilote BIG aura préalablement prédéterminé les conditions météorologiques pendant les 17 jours de l'expérience.

Tableau 2.3 Résumé des simulations.

Domaine	Résolution, Taille (km) et Δt	Date [JJ-MM-AA hh]	Pilotes Météorologiques	Pilotes chimiques	Émissions
BIG	- 20x20 - 3020x3020 - 120 s	15-03-2015 00z au 31-03-2015 23:30z.	- Conditions aux frontières et <i>nudging</i> au-dessus de la CLM: FNL. Conditions initiales: FNL.	- Conditions aux frontières horizontales, tropopause et conditions initiales: MOZART.	-Bateaux: CAMS-GLOB-SHIP. -Anthropiques: HTAPV2 (Janssens-Maenhout et al., 2015). -Biogéochimiques: MEGAN (Guenther et al., 2006), -DMS: (Lana et al., 2012). -Feux de biomasse: (Wiedinmyer et al., 2011).
SMALL	- 4x4 - 124x124 - 24 s	15-03-2015 00z au 31-03-2015 23:30z.	- Conditions aux frontières: BIG. -Conditions initiales: BIG.	- Conditions aux frontières de la tropopause: MOZART. - Conditions aux frontières et initiales: BIG.	
STUDY	- 4x4 - 484x484 - 24 s	29-03-2015 00z au 29-03-2015 23:30z.			

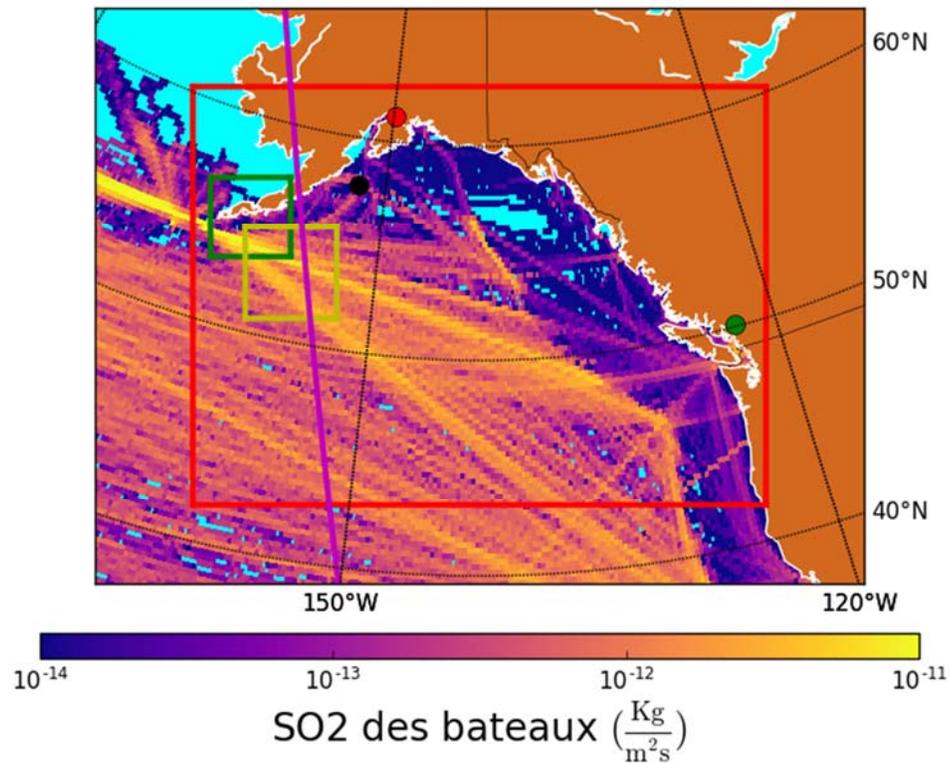


Figure 2.1 Domaines des simulations. En rouge, le domaine BIG. En vert, le domaine piloté SMALL. En jaune, le domaine de l'étude de cas STUDY. Le point rouge représente Anchorage, Alaska, USA, le point noir représente la position géographique du profil vertical à Kodiak, Alaska, USA et le point vert la station météorologique et de qualité de l'air d'ECDC à Mount Whistler, CB, Canada. La trace mauve représente la trajectoire du passage du A-TRAIN le 28 mars 2015 vers 23 :32 UTC. À titre de référence, les émissions de SO₂ des bateaux selon CAMS-GLOB-SHIP entre le 15 et 30 mars 2015 sont fournies.

2.2.1 Météorologie

Les informations des schémas météorologiques utilisés pour les simulations sont résumées dans le tableau 2.4. Puisque la majorité des effets des bateaux est considérée comme étant dans la couche limite marine, il est important de sélectionner un schéma de couche limite fiable. Le schéma de *Mellor-Yamada-Janjic (Êta)* a été sélectionné, en combinaison avec son schéma de couche de surface *TKE scheme* (Janjić, 1994) et le schéma de sol *Noah Land-Surface Model*, contenant les informations de température, humidité, couverture nivale et fraction glacée dans 4 couches de sol (Chen et Dudhia, 2001, Ek et al., 2003). Puisque l'étude porte aussi sur les effets directs, semi-directs et indirects de la radiation, le schéma radiatif utilisé pour les longues et courtes longueurs d'onde est le *Rapid Radiative Transfer Model Global* (RRTMG) (Iacono et al., 2008). Il utilise la méthode de corrélation-K.

Tableau 2.4 Schémas physiques utilisés dans le WRF pour simulations.

Option	Paramétrisation
Microphysique	Morisson (Morisson et al., 2009)
Paramétrisation des cumulus	KF-CuP (Berg et al., 2015)
Courtes longueurs d'onde	RRTMG (Iacono et al., 2008)
Longues longueurs d'onde	RRTMG (Iacono et al., 2008)
Couche limite	MYJ (Janjić, 1994)
Couche de surface	Surface layer TKE scheme (Janjić, 1994)
Sol	Noah Land-Surface Model (Chen et Dudhia, 2001)

2.2.2 Chimie et émissions

Les sous-modules et paramétrisations utilisés pour la chimie dans les simulations sont spécifiés au tableau 2.5, selon les recommandations de Peckham et al., 2015. Cette combinaison a été testée par Marelle et al. (2017). Les conditions chimiques initiales, ainsi que les conditions aux frontières (mises à jour toutes les 6 heures) sont pilotées par le modèle global de transport chimique MOZART-4 (Emmons et al., 2010). Des conditions moyennes latitudinales stratosphériques climatiques sont utilisées pour piloter les conditions aux frontières à 50 hPa (MOZART-4, Emmons et al., 2010). Les émissions ont été incorporées à chaque heure dans le plus bas niveau modèle. Lorsque la résolution temporelle des données obtenues était plus grossière qu'à l'heure, des facteurs hebdomadaires et horaires basés sur Dernier Van der Gon et al. (2011) ont été appliqués pour fournir les émissions au modèle. Peu importe le secteur, les émissions de NO_x sont séparées selon un facteur de 90 % NO et 10 % NO₂ (Finlayson-Pitts et Pitts, 1999). Ces émissions sont décrites dans les pages suivantes. Pour STEAM et HTAPV2, les émissions de COVs fournies sont séparées avec des facteurs sur la spéciation des COVs issus de WRF-Chem. Pour ce faire, les valeurs de COVs sont d'abord séparées en diverses espèces de COVs à l'aide du tableau 2.13 de Murrells et al., 2010. Ensuite, ces valeurs sont adaptées aux espèces existantes dans WRF-Chem, en utilisant une base de données de Carter (2015).

Tableau 2.5 Schémas chimiques utilisés dans le WRF-Chem pour les simulations.

Option	Paramétrisation
Photolyse	FAST-J (Wild et al., 2000)
Schéma de déposition sèche	Wesley (1989)
Chimie acqueuse dans les nuages	Fahey and Pandis (2001)
Chimie gazeuse	CBMZ (Zaveri and Peters, 1999)
Chimie des aérosols	MOSAIC (Zaveri et al., 2008)

2.2.2.1 Émissions EDGAR-HTAP

Les émissions anthropiques utilisées pour nos calculs proviennent de l'inventaire *Hemispheric transport of air pollution, version 2* (HTAPV2) (Janssens-Maenhout et al., 2015). Elles ont une résolution spatiale de 0.1x0.1 degrés et une résolution temporelle mensuelle. Les espèces chimiques émises dans le modèle sont : CO, SO₂, NO_x, NMVOC, NH₃, les particules fines (PM₁₀, PM_{2.5}), les BC, et OC, pour l'année 2010⁴. Les secteurs pris en compte dans cet inventaire sont : le secteur énergétique, les secteurs industriels, les secteurs résidentiels, l'agriculture (sauf la combustion des déchets) et le secteur des transports, à l'exception des bateaux qui seront inclus à l'aide d'une autre base de données, et des avions qui sont considérés comme étant trop hauts par rapport à la CLM pour avoir un impact. À titre de référence, la figure 2.2 représente les émissions de NO_x, SO₂, BC et xylènes fournis par HTAPV2 assimilées par le modèle durant la période du 15 au 30 mars 2015 (figure 2.2 A à D).

⁴ Pour cette étude il a été supposé que les émissions anthropiques ne changeaient pas significativement entre 2010 et 2015.

2.2.2.2 Émissions STEAM (CAMS-GLOB-SHIP)

Les émissions de bateaux font partie du cœur de l'expérience. Pour bien représenter la réalité, elles doivent être précises en résolution temporelle et géographique, puisque le résultat sera sensible aux conditions synoptiques, microphysiques et chimiques de la CLM. Ainsi, la base de données d'émission de bateau sélectionnée est CAMS-GLOB-SHIP disponible sur le site ECCAD (Granier et al., 2019), utilisant le modèle STEAM 3 pour générer ses émissions (Jalkanen et al., 2011, 2015; Johansson et al., 2017). Deux types de méthodologie existent pour calculer les émissions de bateaux : l'approche *top-down* et la proche *bottom-up* (Miola & Ciuffo, 2001). L'approche *top-down* consiste à déterminer les émissions totales des bateaux, sans les avoir associées préalablement à une source particulière. Ces émissions sont obtenues en utilisant des statistiques d'émissions. Des facteurs météorologiques et océaniques sont appliqués et par la suite, et si besoin est, les émissions sont attribuées à chaque bateau passant dans la grille étudiée. Cette technique, reconnue comme étant peu fiable pour une analyse météorologique, mais suffisante pour une analyse climatique, a été utilisée par quelques groupes (Corbett et Fischbeck, 1997, 1999; Skjolsvik et al., 2000 et Endresen et al., 2007). L'approche *bottom-up* quant à elle consiste à déterminer les émissions de bateaux en regardant individuellement les caractéristiques de chaque bateau comme la vitesse, l'essence consommée et les facteurs météorologiques. Cette technique plus précise possède le désavantage qu'il faut connaître les caractéristiques détaillées pour chaque bateau. Ainsi, Entec (2005) et Jalkanen et al. (2009) utilisent cette technique sur des domaines limités en Europe.

Le modèle STEAM3 utilise l'approche *bottom-up* et est le résultat d'un travail de trois versions différentes depuis 2009 (Jalkanen et al., 2009; Johansson et al., 2017). STEAM3 est basé sur un système de géolocalisation global donnant une couverture globale. La base de données CAMS-GLOB-SHIP générée par STEAM3 et utilisée dans ce travail, fournissait, pour l'année 2015, avec une résolution quotidienne et spatiale

de 0.25 degré, les espèces émises par les bateaux suivantes : CO, CO₂, NO_x, COV, SO₂, SO₄²⁻, OC, cendres et finalement le BC sur une résolution moindre de 0.5 degré. À titre de référence, les émissions fournies par STEAM entre le 15 et 30 mars 2015 sont montrées à la figure 2.2 E à H. La méthodologie sommaire de STEAM est la suivante :

D'abord, le modèle obtient la géolocalisation, la vitesse et la direction des bateaux, à l'aide de sources de données externes mondiales. Les bateaux de moins de 300 tonnes ne sont pas légalement obligés de fournir leur position, mais l'erreur causée par l'absence des petits bateaux dans la base de données a été estimée ne dépassant pas 6 % (Jalkanen et al., 2009). STEAM 3 tente ensuite de déterminer le type de bateaux et ses moteurs principaux et auxiliaires. Il estime la puissance nécessaire au bateau pour les mouvements. Si possible, les facteurs environnementaux comme les vagues et les vents sont pris en compte. Il calcule également les émissions des engins auxiliaires (électricité, chauffage, etc.). Finalement, il calcule les émissions résultantes selon la puissance calculée et les autres caractéristiques (par exemple le NO_x dépend surtout de la masse et de la vitesse alors que le SO₂ et le CO₂ dépendent du type d'essence et de mazout) et il interpole les données sur la grille.

2.2.2.3 Feux et sources biogéniques

Les émissions de feux sont fournies par le *Fire INventory from Ncar* (FINN) de façon quotidienne, à une résolution de 1 km X 1 km (Wiedinmyer et al., 2011). Une combinaison de facteur de biomasse, de type et de surface de sol brûlé estimée à l'aide de MODIS est utilisée pour estimer ces émissions. Par la suite, la hauteur d'injection du panache est estimée par le module de préparation des émissions. Les données quotidiennes sont interpolées avec des facteurs horaires avec un pic à 13h heure locale. Les données sont par la suite interpolées sur la grille du domaine avant d'y être insérées. Les émissions naturelles biogéochimiques utilisées proviennent du modèle Model of

Emissions of Gases and Aerosol from Nature (MEGAN) (Guenther et al., 2006) qui est couplé en ligne dans WRF-Chem et utilise des facteurs d'une résolution de $0.1^\circ \times 0.1^\circ$. Les flux d'émissions biogéniques sont calculés en ligne à l'aide des valeurs météorologiques fournies par WRF telles que la radiation solaire et la température.

2.2.2.4 DMS, sels de mer, volcans et poussières de sol

Les émissions de DMS sont très importantes dans la CLM, puisque les DMS peuvent se transformer en SO_2 , interférant par la suite avec les émissions de bateaux. Les émissions de DMS sont calculées à l'aide d'un module utilisant la méthodologie de Nightingale et al. (2000) à partir des contenus océaniques de DMS (Lana et al., 2012), de la température, du vent et d'autres facteurs météorologiques et océaniques. Les émissions de poussières de sol et de sels de mer sont calculées en ligne dans WRF-Chem. Les émissions de sel de l'océan sont basées sur Gong et al. (1997a, 1997b), et utilisent la température ainsi que les vents. Les émissions de poussières de sol sont calculées à l'aide du schéma GOCART (Chin et al., 2002), utilisant les vents, l'érosivité du sol ainsi que son contenu en eau. Au moment de réaliser les expériences, il n'a pas été possible de trouver des données d'émissions volcaniques fiables. Les émissions volcaniques ne sont donc pas incluses dans le modèle. Cela peut poser un problème, puisque le domaine d'étude se situe sur les Aléoutiennes, une région volcanique très active. Il a été supposé qu'une bonne partie des panaches volcanique sont suffisamment chaud pour sortir de la couche limite et que les émissions sont diluées et elles sont transportées suffisamment loin des domaines SMALL et STUDY pour ne pas interagir de façon significative avec les expériences. Selon le rapport annuel du United States Geological Survey, aucune activité volcanique majeure n'a eu lieu pendant la période de simulation, si ce n'est qu'un événement de soulèvement des cendres d'une ancienne éruption volcanique par de forts vents le 11 mars 2015 (Dixon et al., 2017).

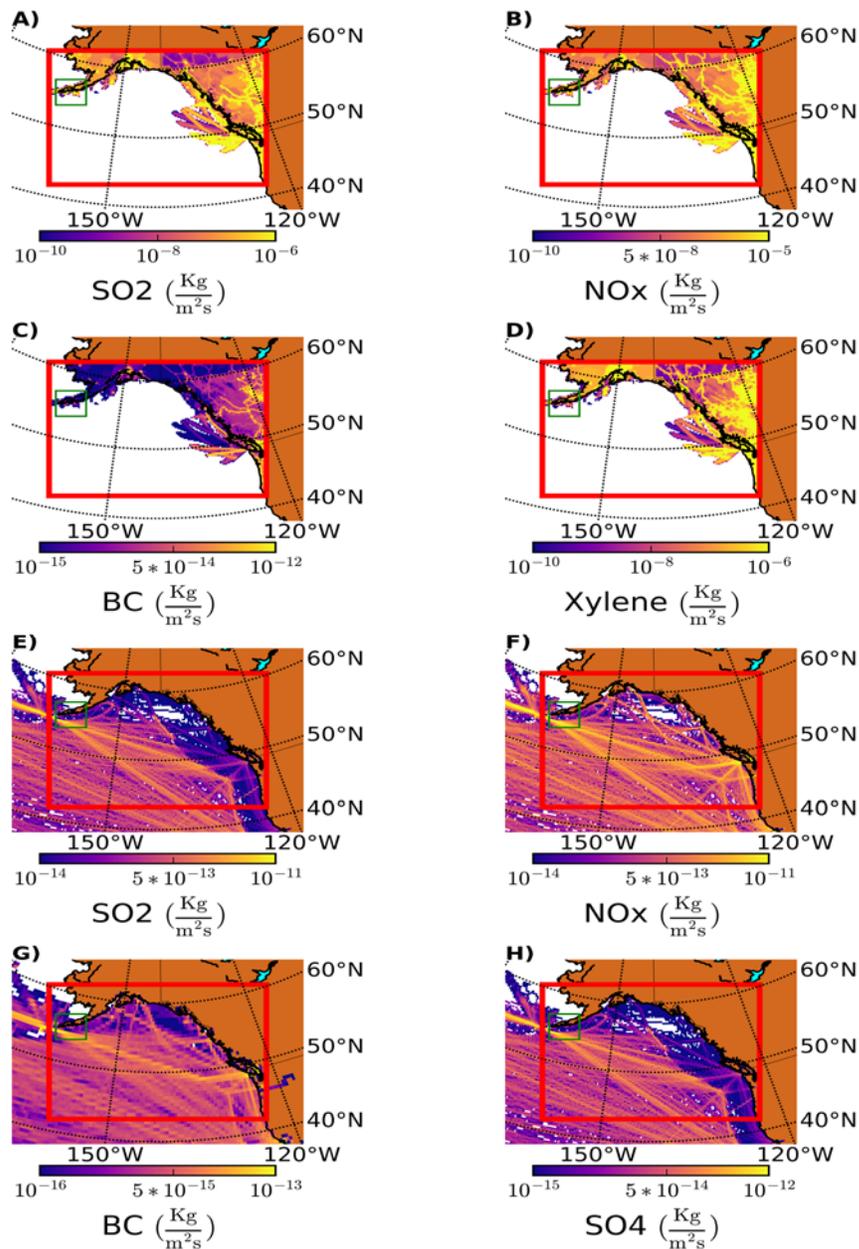


Figure 2.2 Flux moyen des émissions anthropiques HTAPV2 inséré pour A) le dioxyde de soufre, B) les oxydes d'azote C) le carbone-suie et D) le xylène. Flux moyen des émissions anthropiques de bateaux selon CAMS-GLOB-SHIP inséré dans le modèle pour A) le dioxyde de soufre, B) les oxydes d'azote, C) le carbone-suie et D) le sulfate.

2.3 Comparaisons et validation

Pour ce cas d'étude, deux types d'observations sont utilisés; les stations d'observation au sol et les satellites.

La station d'observations d'Environnement et Changement Climatique Canada (ECCC) située à Whistler Mountain, BC, Canada est à 2182 m au-dessus de la mer (figure 2.1). Elle mesure la température, le vent, l'humidité et la composition physico-chimique de l'atmosphère (concentration en gaz traces et en aérosols incluant leur composition). Le sulfate est mesuré et échantillonné aux périodes de 24 heures à l'aide de filtres Teflon. Ces données ont été post-traitées par Michael Wheeler (ECCC) sur une base quotidienne entre le 15 et 30 mars 2015 et sont utilisées à la section 3.8. Même si la station est très surélevée par rapport au niveau de la mer, elle permet de vérifier comment le modèle se comporte vis-à-vis le transport des polluants.

Les satellites apportent l'avantage de nous fournir des observations étalées sur une plus grande étendue géographique que l'observation ponctuelle à Whistler. Deux orbiteurs polaires sont utilisés dans cette étude :

- 1) Terra, un satellite synchronisé sur l'heure solaire avec une période de 99 min. À son bord, plusieurs instruments sont installés dont MODIS. MODIS est un instrument à détection passif possédant un champ de vision de plus de 2330 km de large, sur plus de 36 bandes de longueurs d'onde. Il permet d'observer l'état de l'atmosphère, du sol et de l'océan en temps réel sur diverses couches, facilitant entre autres la vue de la couverture nuageuse. Afin de comparer l'albédo du modèle avec les observations, une image de synthèse de la vision de l'œil humain a été utilisée. Cette image, dite *true color* a été synthétisée à partir de l'algorithme de Gumley et al. (2003)

et à partir de multiples bandes de MODIS et est disponible sur le site NASA Worldview⁵.

2) Un satellite à défilement sur la constellation de satellites A-TRAIN, une série de satellites situés à 705 km d'altitude et de période de rotation 98,5 minutes : CloudSat. C'est un satellite de type radar mesurant la puissance de rétrodiffusion en fonction de la distance à l'aide d'une fréquence radar de 94 GHz générée par l'instrument *Cloud Profiling Radar* à bord de CloudSat. L'utilisation de ce type de fréquence permet un bon compromis entre la sensibilité, l'atténuation, le gain de l'antenne (1.85 m) et l'efficacité de transmission (33dB). Le produit utilisé est le 2B-CWC-RVOD (Austin et al., 2009). Ce produit a été conçu pour déterminer les caractéristiques microphysiques des nuages, dont le contenu en eau liquide nuageuse et totale, en glace totale, la taille des gouttelettes de pluie et des cristaux de neige. La concentration d'hydrométéores liquides est aussi calculée, mais est supposée constante dans la colonne et est donc peu fiable.

2.4 Méthodes d'analyse des résultats

Les simulations sur le domaine SMALL fournissent une sortie toutes les 30 minutes, donnant un ensemble de 48 fichiers par jour ou plus de 768 matrices spatiales pour calculer une moyenne du 15 au 30 mars 2015. Alors que la moyenne permet de voir l'effet général des bateaux, la variabilité des conditions synoptiques, chimiques et macro/microphysiques rendent l'analyse plus complexe. Il est donc nécessaire d'appliquer des filtres physiques et statistiques aux moyennes afin d'extraire les signaux cachés dans la variabilité naturelle.

⁵ L'image *truecolor* est générée sur le siteweb : <https://worldview.earthdata.nasa.gov/>.

2.4.1 La moyenne et les filtres utilisés

Dans cette étude, l'étude de la modification des paramètres microphysiques des nuages par les bateaux est au centre du projet. Afin de comparer les caractéristiques des nuages dans la simulation SHIP et NOSHIP, les points de grilles à un endroit et un pas de temps spécifiques qui ne possèdent pas de nuages dans une des deux simulations ne sont pas pris en considération dans la moyenne présente sur les figures 3.9 et 3.11 à 3.13. Ce filtre possède un désavantage puisqu'il se peut que le nuage se soit simplement formé sur un point de grille adjacent. Il enlève donc quelques points d'échantillons à la moyenne effectuée et cela diminue le poids statistique de ces figures.

2.4.2 Approximation de la hauteur du géopotential (GHT) et approximation de la couche limite.

L'étude de l'impact des bateaux se concentre dans la couche limite. Pour ce faire, on utilise un diagnostic de hauteur du sommet de la CLM, basé sur la longueur de mélange fournie par le WRF. Ce diagnostic est en unité d'altitude. Or, les données en sortie du modèle ne fournissent que les pressions pour chaque point de grille. Ainsi, pour utiliser ce diagnostic, l'approximation des hauteurs géopotentielle a été utilisée pour convertir l'altitude en mètres à chaque niveau. L'approximation de la hauteur géopotentielle pour un niveau d'intérêt Z_{Niveau} , pour un sur un point (i,j) à un temps t et est fourni à l'équation suivante:

$$Z_{Niveau} - Z_{SFC} = \frac{\ln\left(\frac{P_{Niveau}}{P_{SFC}}\right) * \sum_{Z_{LEV}=0}^{Z_{Niveau}} \left\{ \theta_{LEV} (1 + 0,608 r_{vLEV}) * \left(\frac{P_{LEV}}{P_{SFC}}\right)^{\frac{2}{7}} \right\}}{\frac{g}{Rd} * NIVEAU} \quad (2.10)$$

où P_{Niveau} , P_{SFC} , P_{LEV} , Z_{SFC} , θ , r_v sont respectivement la pression du niveau d'intérêt, la pression de la surface, la pression à un niveau donné intermédiaire, l'altitude de la surface, la température potentielle et le rapport de mélange en vapeur d'eau selon un

intermédiaire niveau donné. g est la constante gravitationnelle = $9.81 \frac{m}{s^2}$, R_d est la constante de chaleur spécifique de l'air sec selon la loi des gaz parfaits = $287 \frac{J}{Kg \cdot K}$.

2.4.3 Le forçage radiatif

Afin de calculer la moyenne du forçage radiatif aux courtes longueurs d'onde, plusieurs filtres ont été appliqués aux données. D'abord, les points de grille où un nuage était présent au-delà de la couche limite dans une des deux simulations ont été enlevés de la moyenne afin d'analyser que le forçage dans la CLM. Ensuite, puisque les ondes courtes sont absentes pendant la nuit et que le nombre d'heures d'ensoleillement varie selon la position géographique, seuls les moments où tous les points de grilles du modèle recevaient un influx solaire ont été sélectionnés. Ainsi, le forçage radiatif moyen $F_{i,j}$, à un pas de temps donné pour un point i,j est calculé par l'équation suivante :

$$F_{i,j} = ((ISR - OSR)_{SHIP,i,j} - (ISR - OSR)_{NOSHIP,i,j}) * \prod_{ii,jj=0,0}^{ni,nj} \left(\frac{ISR_{ii,jj}}{ISR_{ii,jj}} \right) * \left[\begin{array}{l} 1 \text{ si : } \sum_{k=TOPPBL}^{TOP} (CLD_{SHIP,k}) * \sum_{k=TOPPBL}^{TOP} (CLD_{NOSHIP,k}) = 0 \\ 0 \text{ si : } \sum_{k=TOPPBL}^{TOP} (CLD_{SHIP,k}) * \sum_{k=TOPPBL}^{TOP} (CLD_{NOSHIP,k}) > 0 \end{array} \right]_{i,j} \quad (2.11)$$

où CLD_{SHIP} et CLD_{NOSHIP} représentent la fraction nuageuse par niveaux pour SHIP et NOSHIP, TOP représente le sommet de l'atmosphère ISR et OSR représentent respectivement la radiation solaire incidente et sortante et k représente les niveaux modèles. TOP CLM est le sommet de la CLM.

Une méthode sélective a été appliquée pour calculer la moyenne du forçage radiatif. Pour ce faire, le forçage radiatif en ciel clair est calculé comme étant la moyenne du forçage entre les deux simulations si aucun nuage n'est présent dans la colonne. Cela

réduit la significativité statistique puisqu'il est rare qu'il n'y ait aucun nuage dans la colonne, mais cela donne une évaluation approximative du forçage radiatif direct.

2.4.4 Mode d'accumulation

Tel que vu au tableau 2.1, le schéma des aérosols MOSAIC utilise 8 classes de taille pour décrire le spectre en taille des aérosols. Pour la microphysique des nuages, le mode d'accumulation des aérosols domine la nucléation. Afin de déterminer les propriétés des aérosols dans le mode d'accumulation, une approche semblable à celle de Gao et al. (2016) a été utilisée. En supposant que le spectre de taille du mode d'accumulation est situé entre $0.117 \mu\text{m}$ et $2.940 \mu\text{m}$ (Gao et al., 2016), les classes de taille 3-4-5-6 ont été sélectionnées pour le représenter (tableau 2.1).

2.4.5 Rétrotrajectoires

Afin d'analyser l'origine des masses d'air au chapitre 4, les rétrotrajectoires d'*Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory* (HYSPLIT) sont utilisées (Draxler et Hess, 1997). Les rétrotrajectoires sont générées via le site web d'HYSPLIT⁶ et elles sont pilotées à l'aide des réanalyses du Global Forecasting System (GFS). Les rétrotrajectoires ont comme point d'arrivée le centre du domaine STUDY à 3 niveaux d'altitudes clés pour représenter le milieu et le sommet de la couche limite ainsi que la moyenne troposphère (100 m, 500 m, 5000 m). Elles sont générées par incréments d'heures d'arrivée de 6 heures entre le 29 mars 2015, 10Z et le 30 mars, 06Z. Par limitation du fournisseur de données, seules les rétrotrajectoires des 120 dernières heures sont accessibles.

⁶ Elles sont générées via le site web : <https://www.arl.noaa.gov/hysplit/>.

CHAPITRE III

IMPACT DES BATEAUX SUR LES NUAGES AU LARGE DES ALÉOUTIENNES.

Afin d'analyser l'impact des bateaux sur les nuages à l'aide des simulations, l'approche utilisée dans ce chapitre est d'étudier l'effet moyen des bateaux sur une période à moyenne échelle. Cette technique est utile pour extraire des signaux significatifs dans des cas de grande variabilité naturelle, telle que la période choisie, du 15 au 30 mars 2015, qui cible un moment particulier caractérisé par une forte variabilité météorologique. L'analyse de la situation synoptique est donc nécessaire à la compréhension des signaux extraits dans les prochaines sections.

3.1 Analyse synoptique

La deuxième partie du mois de mars 2015 est caractérisée par une circulation de nombre d'onde 3 à l'échelle planétaire, superposé à de multiples ondes courtes (figure 3.1). Entre le 15 et le 30 mars 2015, le courant-jet transporte plusieurs tempêtes hivernales le long de la côte est-américaine, au nord de la Russie et au sud de l'Alaska (figure 3.1). Une crête persistante sur l'ouest de l'Amérique du Nord, combinée à un creux stationnaire sur le Pacifique Nord favorise le développement de basse pression initiée par l'advection de tourbillon positif (figure 3.2). L'anticyclone au large de la Californie, située anormalement au nord, favorise l'advection de masses d'air chaud et humide vers le Nord et l'est du golfe de l'Alaska. Deux tempêtes traversent le sud de

l'Alaska et les Aléoutiennes les 15 et 25 mars 2015 (figure 3.2). En arrivant du sud-ouest de la région, elles apportent, à l'est des Aléoutiennes, notre région d'étude, un flux d'humidité anormalement élevé pour la saison. Elles favorisent également un vent du nord et du nord-est du 15 au 17 et du 24 au 30 mars. Ces masses d'air originaires du nord sont donc possiblement polluées par l'extraction pétrolière en Alaska. Le chapitre 4 reviendra sur cette hypothèse.

Ainsi, lors de l'analyse des prochains résultats, plusieurs facteurs météorologiques doivent être pris en considération. La pollution initiale de la masse d'air (celle simulée par la simulation sans bateaux, NOSHIP) dépend de la provenance de la masse d'air. Cela peut affecter l'effet qu'ont les bateaux sur le spectre chimique de l'air et des aérosols, en modifiant, tamponnant ou catalysant les réactions chimiques responsables de la conversion gaz-particules. Éventuellement, cela peut donc affecter la nucléation des hydrométéores dans les nuages. De plus, lors du passage d'une dépression, la convergence en surface et le mouvement vertical masquent en partie les signaux moyens, en diluant les émissions navales dans une couche limite plus épaisse. Il est également possible que certaines journées ne soient pas propices à la formation de nuages. Les prochaines analyses sur l'impact moyen des bateaux doivent ainsi considérer les variations de l'environnement.

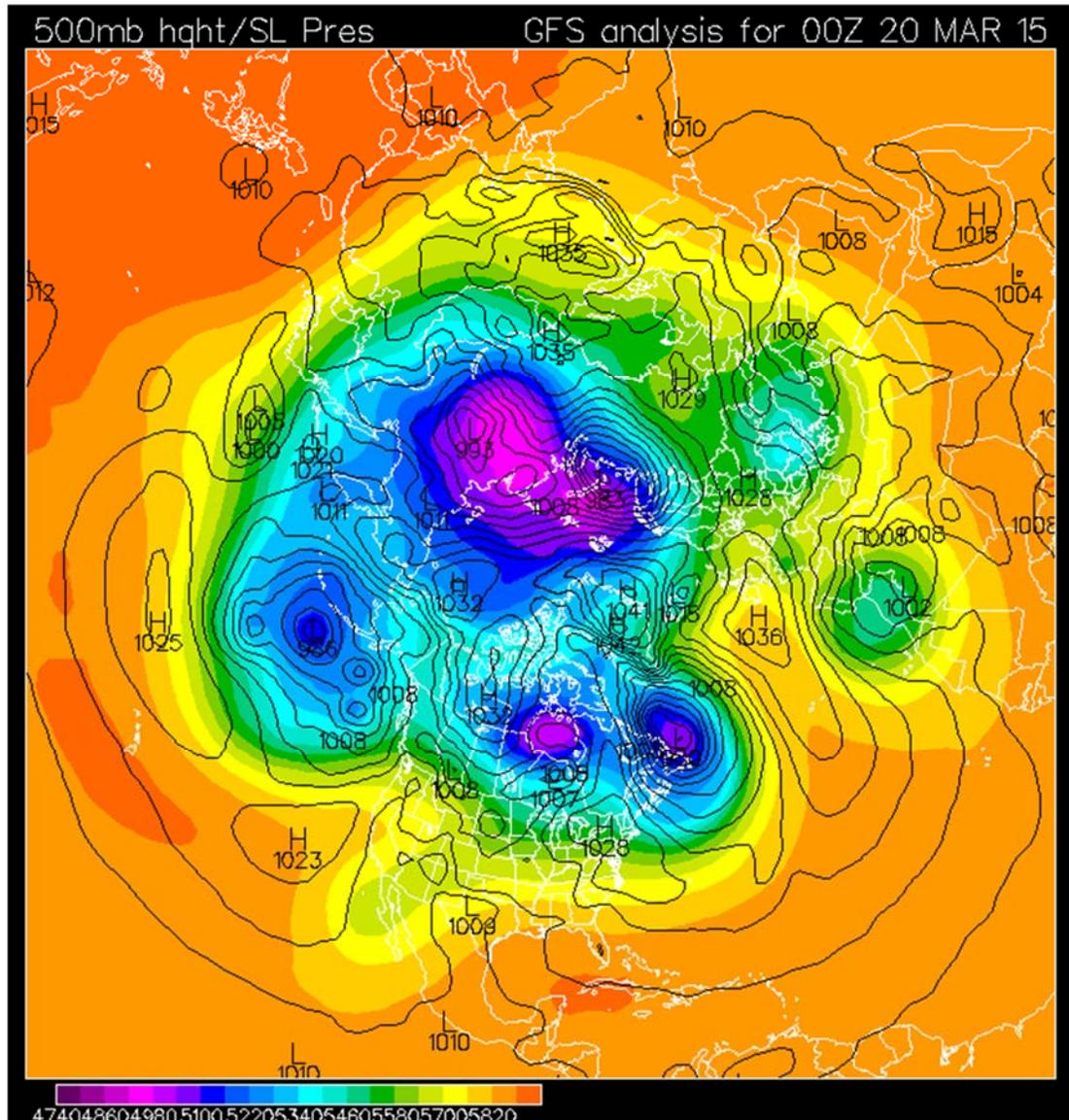


Figure 3.1 Situation météorologique de l'hémisphère nord le 20 mars 2015. Les couleurs représentent les épaisseurs géopotentielle en m de la couche 1000-500 hpa, entre 4740 m et 5820 m. Les lignes pleines noires représentent la pression au niveau de la mer en hpa⁷.

⁷ Carte obtenue sur le siteweb de meteocentre : <http://meteocentre.com/>.

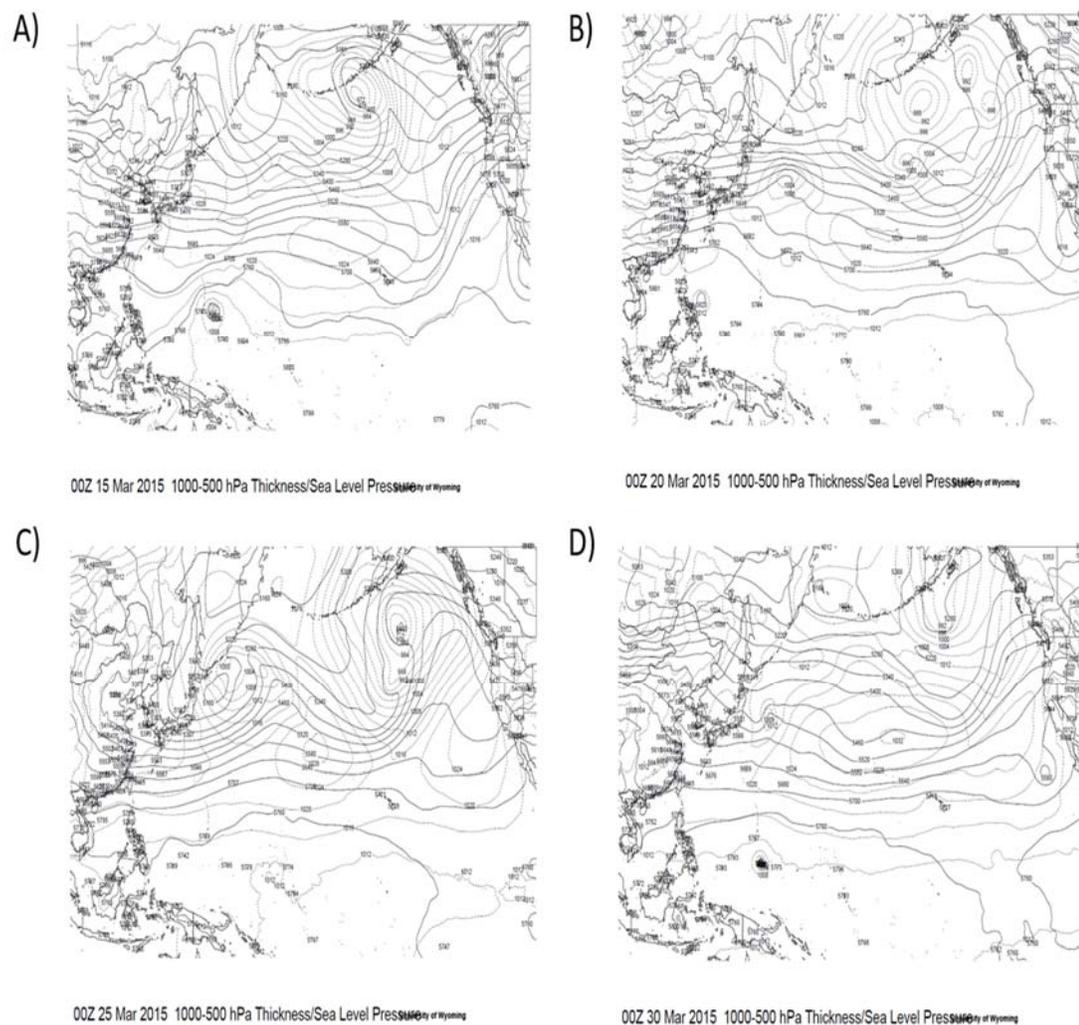


Figure 3.2 Évolution de la situation météorologique sur le nord du Pacifique pour la période du 15 au 30 mars 2015 pour A) le 15 mars, B) 20 mars, C) 25 mars, D) le 30 mars. Les lignes pointillées représentent la pression en hPa en surface et les lignes pleines représentent les épaisseurs géopotentielle à 1000-500 hPa en m^8 .

⁸ Carte obtenue sur : <http://weather.uwyo.edu/>.

3.2 Effet des bateaux sur la qualité de l'air

Avec les réglementations et l'avancement de la technologie, les processus de combustion d'essence dans les bateaux deviennent plus efficaces et la plupart des émissions de bateaux sont sous forme gazeuse plutôt que sous forme d'aérosols (Corbett, 2010). Ainsi, les émissions massiques de gaz SO₂ sont 10 à 100 fois plus importantes que celles des particules de sulfate, un sous-produit du SO₂ (réaction R 1.4, figure 3.3 A et C). Le flux moyen de SO₂ et de NO_x émis par les bateaux entre le 15 et le 30 mars 2015 dans le domaine SMALL, au sud des Aléoutiennes est d'environ 10⁻¹² kg m⁻² s⁻² selon les émissions CAMS-GLOB_SHIP, mais atteint en moyenne 5x10⁻¹² kg m⁻² s⁻² au centre du corridor de passage maritime le plus dense (figure 3.3 A et B). Cependant, il est presque nul dans la partie nord des Aléoutiennes, cette dernière étant encore en partie couverte de glace à cette époque. Les émissions de bateaux augmentent, en moyenne, d'un facteur 20 la concentration de SO₂ dans la CLM, d'un facteur 1.5 la concentration en sulfate et d'un facteur 11.5 la concentration en NO_x (figure 3.3 D et E). Ces résultats s'accordent avec d'autres études précédentes montrant que les bateaux contribuent à la mauvaise qualité de l'air des zones portuaires de l'Alaska (Mölders, 2010; Porter, 2011).

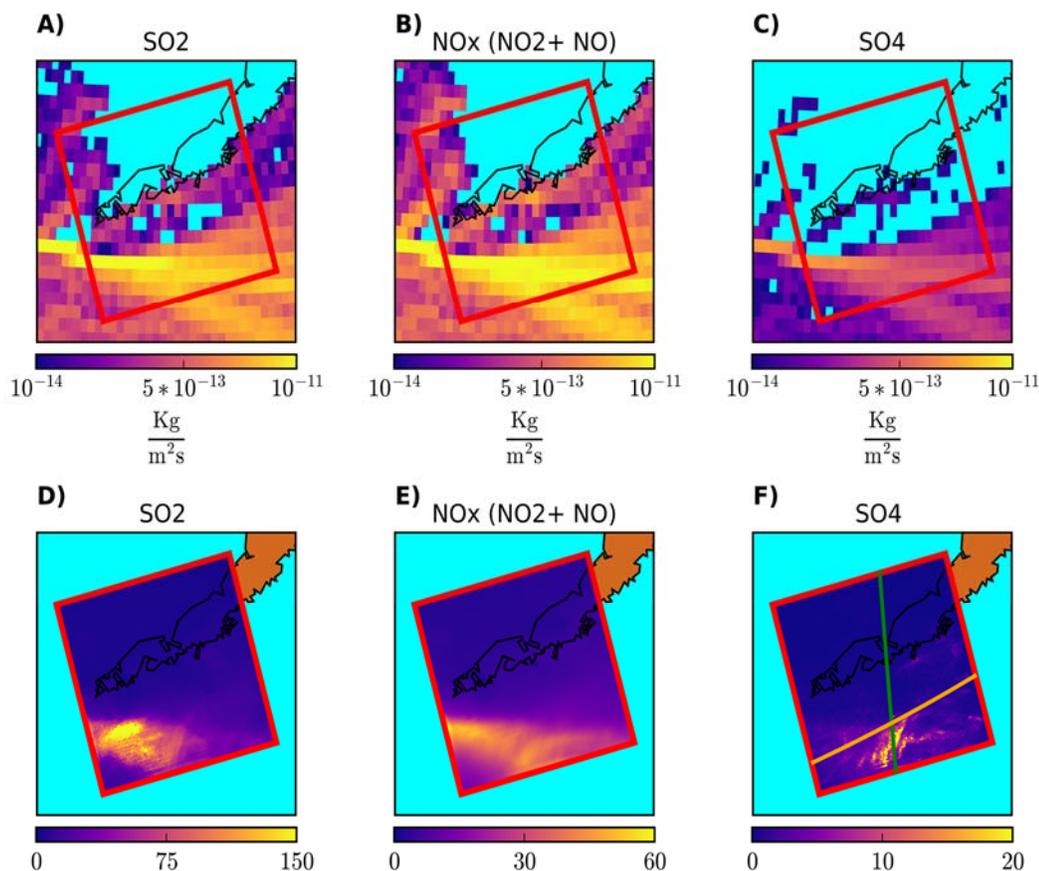


Figure 3.3 Émissions de bateaux et changement dans la concentration des composés chimiques dans la CLM entre le 15 et 30 mars 2015 dans le domaine SMALL. Flux d'émission massique provenant des bateaux pour A) le SO₂, B) le NO_x et C) le SO₄. Changement relatif moyen de la composition de l'air en D) SO₂, E) en NO_x et D) en SO₄ entre la simulation SHIP et NOSHIP, où le changement relatif est calculé comme étant : $\frac{SHIP_{\text{espece}} - NOSHIP_{\text{espece}}}{NOSHIP_{\text{espece}}}$. La ligne verte et la ligne orange représentent respectivement la trajectoire N-S et O-E des coupes verticales des figures 3.6, 3.7 et 3.12.

Comme on peut l'anticiper, la concentration en nombre d'aérosols augmente dans tout le domaine, et ce jusqu'à 3 fois la valeur de la simulation du cas SHIP près des Aléoutiennes (figure 3.4). Ce maximum est colocalisé avec la densité de la circulation maritime et les émissions maximales des bateaux (figure 3.3). Cependant, les aérosols provenant des deux corridors navals principaux, soit ceux des routes Vancouver-Aléoutienne et Californie-Aléoutiennes, n'ont pas d'impact visible direct dans l'est du Pacifique dans le domaine BIG (figure 3.4). Cela peut s'expliquer entre autres par le transport des aérosols émis par les bateaux par les vents dominants du sud et du sud-ouest, diluant et transportant les aérosols vers le nord (figure 3.2). Cela s'explique aussi par la résolution plus grossière de BIG, affectant le calcul du spectre chimique des aérosols et des gaz de la masse d'air. Le secteur du domaine SMALL est moins affecté par les vents du sud en raison de la barrière imposée par la topographie de l'Alaska et des Aléoutiennes, et par une plus grande variabilité méridionale des vents dans la région. De plus, le domaine SMALL est centré sur maximum d'émissions de bateaux. Ainsi, le reste de l'analyse se concentrera à visualiser les effets des bateaux dans le domaine SMALL. Le mode d'accumulation des aérosols est celui qui sera le plus susceptible d'activer la nucléation des gouttelettes. Ainsi le reste de cette étude se concentrera sur l'analyse des aérosols dans le mode d'accumulation.

La moyenne de la concentration en nombre d'aérosols dans le mode d'accumulation a augmenté, entre les scénarios SHIP et NOSHIP de 4 particules cm^{-3} , et la médiane de 6 particules cm^{-3} (figure 3.5, tableau 3.1). De plus, le 95^e centile est augmenté de 5 particules cm^{-3} , indiquant que beaucoup plus de points de mailles possèdent une concentration en aérosols plus élevée que la référence NOSHIP (figure 3.5). Tel que vu sur la coupe ouest-est (O-E) de la figure 3.6 E), qui suit approximativement la région de maximum des émissions de bateaux, l'impact des bateaux sur la concentration en nombre d'aérosols est ressenti dans les basses couches de la CLM, avec un maximum localisé à l'endroit où les émissions sont maximales. De manière générale, la plupart des changements sont observés sous le cinquième niveau vertical du modèle (~600 m),

avec un maximum sous le troisième niveau vertical (~300 m), à l'ouest et sous le deuxième niveau plus à l'est (figure 3.6 E). Ces derniers maximums coïncident avec la hauteur moyenne de la couche limite, supportant l'hypothèse que la plupart des aérosols sont confinés dans la CLM. Sur la coupe nord-sud (N-S, figure 3.6 F), le changement relatif de la concentration en nombre d'aérosols dans le mode d'accumulation entre les deux simulations décroît rapidement avec l'altitude et avec la latitude. Il est fortement positif au sud des Aléoutiennes en comparaison du secteur au nord, en concordance aux émissions de bateaux. Le changement relatif de la concentration en nombre d'aérosol augmente d'un facteur allant jusqu'à 4 et il est strictement positif dans toute la CLM (figure 3.6 E). De plus, le changement relatif de la concentration en nombre d'aérosols est statistiquement significatif dans toute la plus grande partie de la couche limite sur les deux coupes, surtout au sud des Aléoutiennes (figure 3.7). Notons que sur les océans nordiques, l'advection d'air froid rend la CLM très confinée et surmontée d'une inversion forte. Ainsi, l'impact en altitude des émissions des bateaux demeure faible et fortement lié à la stabilité statique de la couche atmosphérique ainsi que de l'épaisseur de la CLM, puisqu'une CLM peu profonde et très stable contraindra tous les polluants dans les bas niveaux de la couche de mélange et concentrera l'effet des émissions, mais limitera leur effet sur les niveaux supérieurs. Dans le cas présent, même si la couche limite est généralement stable, il est clair que les aérosols sont sujets à être transportés à méso échelle. En effet, la concentration en nombre d'aérosols est presque doublée dans les couches supérieures de la CLM au nord des Aléoutiennes, là où les émissions de bateaux sont quasi nulles (figures 3.3, 3.6 F).

Certains gaz émis par les bateaux sont des précurseurs d'aérosols. En particulier, le SO_2 qui forme du sulfate (réaction R1.4) et les NO_x qui forment du nitrate (réactions R1.5 à R1.8). La concentration massique de SO_4^{2-} , dans le mode d'accumulation, moyenné dans la CLM, a faiblement augmenté de 8 % (tableau 3.1, figure 3.5, figure 3.6 C et D). Le changement relatif de la concentration massique de SO_4^{2-} , augmente au maximum d'un ordre de grandeur et reste colocalisé avec les émissions des bateaux

dans les plus bas niveaux de la couche limite (figure 3.6 C et D). Il n'est statistiquement significatif que dans les 3 à 4 plus bas niveaux verticaux du modèle, surtout près des émissions de bateaux, au sud de la coupe N-S et à l'ouest de la coupe O-E (figure 3.7 C et D). La faible significativité statistique du changement dans la concentration en sulfate peut être expliquée en partie par la grande variabilité de la concentration en sulfate dans la masse d'air maritime, entre autres dû aux émissions de DMS, qui varient selon la température de la masse d'air. La concentration massique du nitrate dans le mode d'accumulation augmente quant à lui en moyenne d'un facteur 6 (tableau 3.1) et localement d'un facteur allant jusqu'à 100 fois (figure 3.6 A et B). La concentration massique de nitrates dans le mode d'accumulation compte pour 25% du total en nitrate dans la simulation NOSHIP et passe à 70% pour la simulation avec les bateaux (tableau 3.1). C'est une variation importante, puisque les aérosols riches en nitrates dans le mode d'accumulation sont de bons NC et les bateaux émettent beaucoup de NO_x , précurseurs de nitrates (Corbett et al., 2010). La dispersion statistique des données (75^e-25^e centiles, figure 3.5) augmente beaucoup dans la simulation SHIP, montrant une grande variabilité temporelle et géographique de la concentration du NO_3^- . L'augmentation relative de la concentration massique en nitrate est statistiquement significative pour les 8 premiers niveaux du modèle, soit au-delà de la couche limite moyenne (figures 3.7 A et B).

Ainsi, le nitrate augmente fortement dans la couche limite en comparaison des sulfates dans le mode d'accumulation. Puisque la seule voie de production de sulfates dans CBM-Z est la réaction R1.4, via le SO_2 , l'explication la plus probable est que le sulfate dans les aérosols du mode d'accumulation est déjà saturé dans la simulation NOSHIP. Le nitrate, quant à lui, est quasi absent de la simulation NOSHIP et il augmente donc rapidement par les réactions R1.5 à R1.8, lorsqu'il y a émission de NO_x par les bateaux. Un facteur important à considérer est le changement interne de la composition des aérosols. Même si le premier effet indirect des aérosols sur les nuages est possiblement visible, il faut tenir compte du changement de composition altérant leur hygroscopicité

individuelle ainsi que leur capacité à agir comme NC. Le chapitre 4 reviendra sur ce concept.

Tableau 3.1 Propriétés des aérosols du mode d'accumulation dans la CLM dans le domaine SMALL.

Espèce	Quantité	No SHIP	SHIP
Nombre d'aérosols [Particules/cm ³ _{air}]	Moyenne	37.5	41.7
	5 ^e percentile	4.52	5.82
	95 ^e percentile	88.3	93.5
	$\frac{\text{Nombre}_{\text{accumulation}}}{\text{Nombre}_{\text{total}}}$	0.29	0.31
Masse de SO ₄ ²⁻ [µg/m ³ _{air}]	Moyenne	0.23	0.25
	5 ^e percentile	0.012	0.02
	95 ^e percentile	0.62	0.63
	$\frac{\text{Masse}_{\text{accumulation}}}{\text{Masse}_{\text{totale}}}$	0.81	0.88
Masse de NO ₃ ⁻ [µg/m ³ _{air}]	Moyenne	0.04	0.16
	5 ^e percentile	0.004	0.02
	95 ^e percentile	0.10	0.44
	$\frac{\text{Masse}_{\text{accumulation}}}{\text{Masse}_{\text{totale}}}$	0.25	0.70

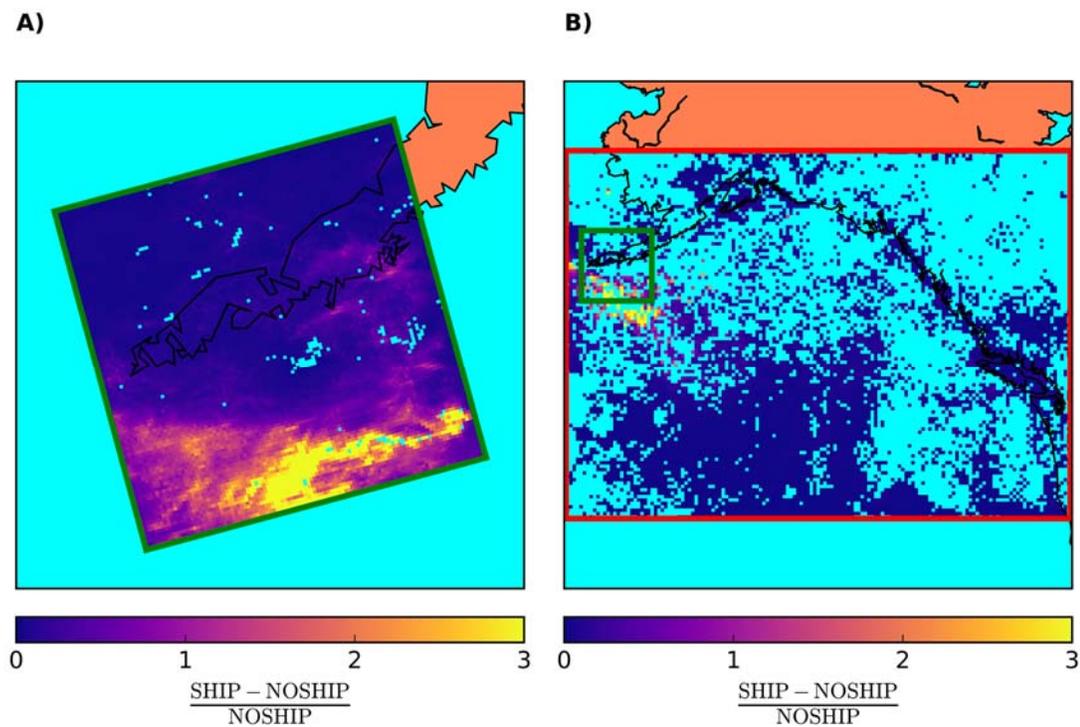


Figure 3.4 Changement relatif de la concentration en nombre d'aérosols entre la simulation SHIP et NOSHIP, calculé comme étant: $\frac{\text{SHIP}_{\text{densité d'aérosols}} - \text{NOSHIP}_{\text{densité d'aérosols}}}{\text{NOSHIP}_{\text{densité d'aérosols}}}$, sur le domaine SMALL en A) et sur le domaine BIG à en B). Les valeurs qui ne sont pas statistiquement significatives à 95 % selon un test T de Welch ne sont pas montrées.

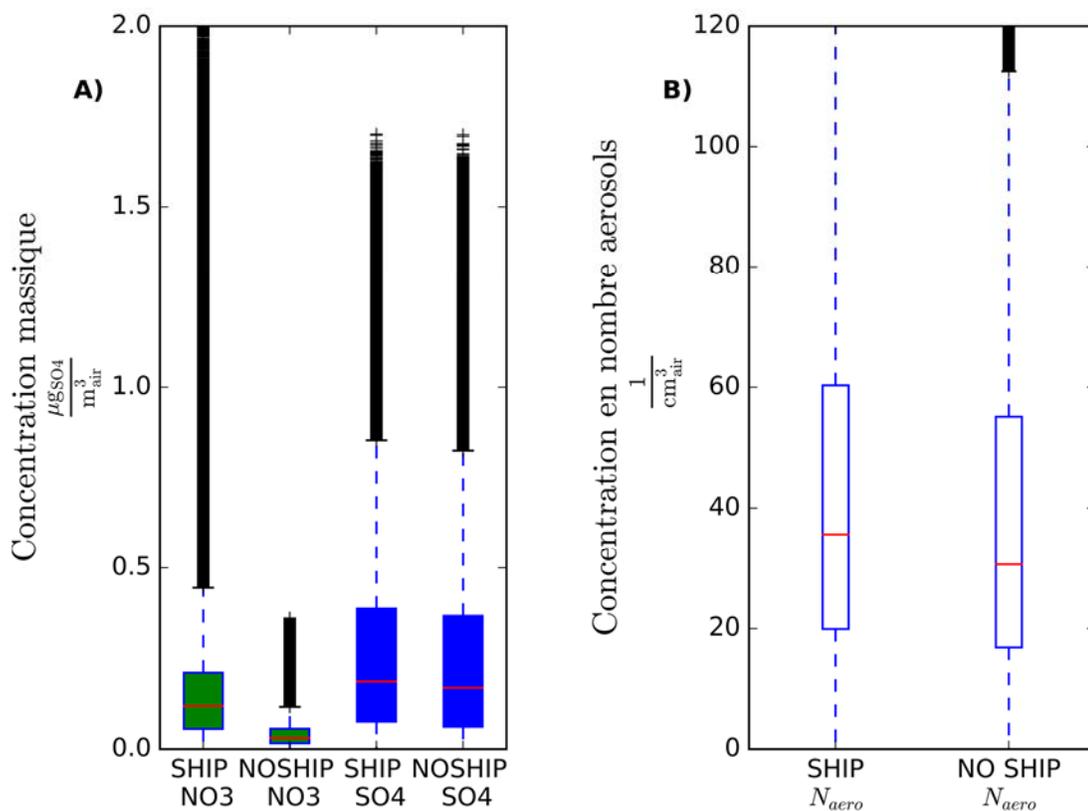


Figure 3.5 Propriétés moyennes des aérosols dans le mode d'accumulation pour le domaine SMALL pour les simulations SHIP et NOSHIP dans la CLM. En axe vertical, distribution en boîte à moustaches de A) concentration massique en NO_3^- (en vert) et SO_4^{2-} (en bleu) et B) la concentration en nombre d'aérosols. Les lignes rouges représentent la médiane. Les extrémités des boîtes représentent le 25^e et 75^e centile. Les lignes bleues pointillées représentent, à leur extrémité supérieure, le 95^e centile, alors que les croix noires représentent toutes les données au-delà du 95^e centile.

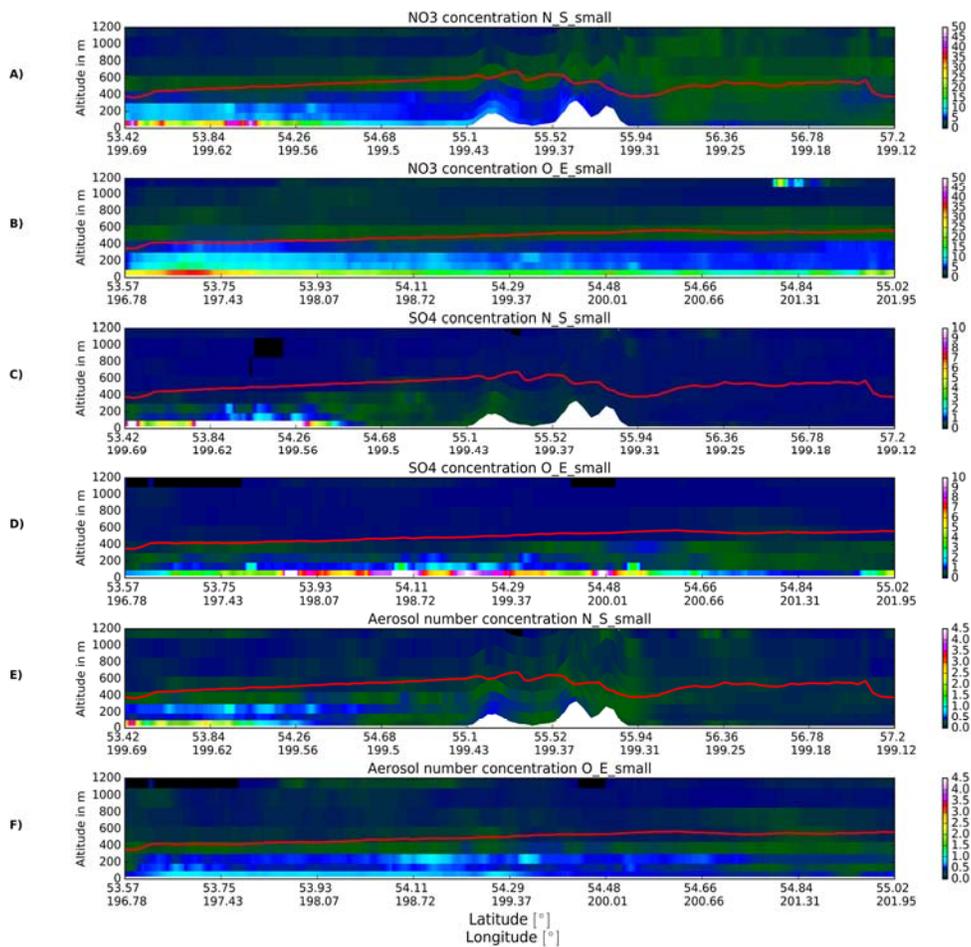


Figure 3.6 Coupe verticale du changement relatif moyen de la composition des aérosols en mode d'accumulation en nitrate (A et B), de la composition de l'aérosol en sulfate (C et D) et de la concentration en nombre d'aérosol (E et F) entre les simulations SHIP et NOSHIP. Le changement relatif moyen est calculé comme étant : $\frac{SHIP_{propriété} - NOSHIP_{propriété}}{NOSHIP_{propriété}}$. La coupe verticale est analysée sur la trace N-S pour A), C) et E) et sur la trace E-O pour B), D) et F). La trajectoire des traces se situe sur la figure 3.3. La ligne rouge représente la hauteur moyenne de la couche limite marine.

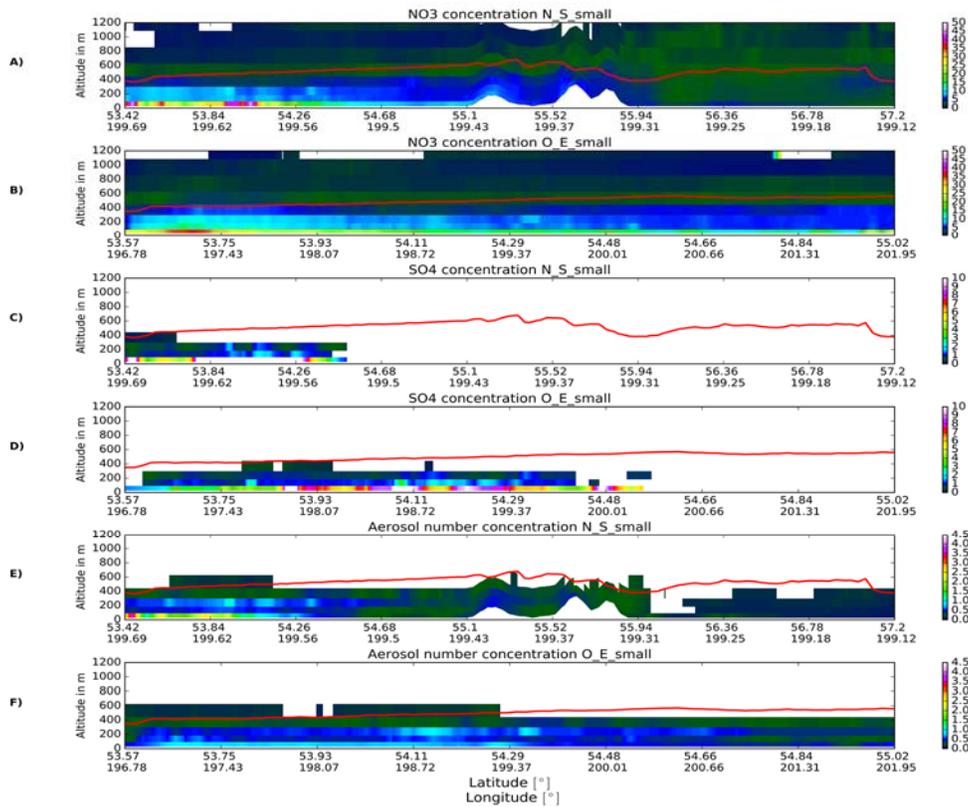


Figure 3.7 Coupe verticale du changement relatif moyen de la composition des aérosols en mode d'accumulation en nitrate (A, B), de la composition de l'aérosol en sulfate (C et D) et de la concentration en nombre d'aérosol (E et F) entre les simulations SHIP et NOSHIP. Le changement relatif moyen est calculé comme étant : $\frac{\text{SHIP}_{\text{propriété}} - \text{NOSHIP}_{\text{propriété}}}{\text{NOSHIP}_{\text{propriété}}}$. La coupe verticale est analysée sur la trace N-S pour A), C) et E) et sur la trace E-O pour B), D) et F). La trajectoire des traces se situe sur la figure 3.3. La ligne rouge représente la hauteur moyenne de la couche limite marine. Sur cette figure, un test T de Welch a été appliqué pour une probabilité de 95 % et les valeurs non statistiquement significatives ont été blanchies.

3.3 Forçage radiatif des bateaux sur l'atmosphère

Les émissions anthropiques ont divers impacts sur le bilan radiatif du système terre-atmosphère. Par exemple, les bateaux exercent un forçage radiatif négatif sur l'atmosphère et à la surface (Ødemark et al., 2012; Marelle et al., 2016, 2018). Les émissions de bateaux peuvent interagir indirectement avec le rayonnement solaire, en affectant l'albédo des nuages. À première vue, le forçage radiatif n'est pas fortement corrélé avec les émissions de bateaux uniquement, car elle inclut aussi d'autres effets, dont la variabilité naturelle de l'atmosphère simulée par le modèle (figure 3.8 A)). Même s'il n'est pas possible de dire si le forçage sur tous les points de maille est statistiquement significatif (selon un test T de Welch non concluant), certaines zones ressortent tout de même de l'analyse. Une structure de forçage radiatif négatif (en rouge sur la figure 3.8 A) émerge au-dessus de la zone des émissions maximales. De plus, deux secteurs de forçages négatifs émergent à l'est et au nord-ouest du domaine (cercles bleu et vert sur la figure 3.8 A). La signature encerclée en vert à l'est ne peut pas être expliquée directement par le passage des bateaux et elle est probablement liée à plusieurs effets cumulatifs. La structure encerclée en bleu au nord-ouest des Aléoutiennes peut être associée à de l'advection d'air froid sur de l'eau chaude, plus propice aux *shiptracks* (Durkee et al., 2000) et à la formation de nuages résultant du passage des bateaux, même s'ils sont peu nombreux dans ce secteur (figure 3.3). Le forçage radiatif moyen des bateaux dans la CLM vaut $-1,1 \frac{W}{m^2}$. Il varie de $-10 \frac{W}{m^2}$ à $1 \frac{W}{m^2}$ (figure 3.8 A). Marelle et al. (2016) ont obtenu un forçage moyen en mer Norvégienne de $-1.8 \frac{W}{m^2}$ dû à une augmentation relative d'environ 15 % de sulfate en masse par les bateaux alors que pour l'Alaska, nous obtenons une augmentation de 8 % en masse pour tous les modes d'aérosols confondus. Nos résultats sont du même ordre, mais avec une amplitude influencée par la variabilité d'échantillons. De plus, les valeurs obtenues sont dans un secteur avec un passage concentré dans un détroit et où la densité de bateaux est fortement variable, alors que celui choisi par Marelle et al. (2016) est centré

sur une mer dont le trafic maritime est élevé et plutôt distribué dans l'espace. Finalement la composition chimique de l'air est différente entre le nord du Pacifique et le nord de l'Atlantique, lié à de différentes activités anthropiques.

Le forçage radiatif des émissions de bateaux peut être séparé en deux composantes principales. D'abord, le forçage dû au changement dans la composition et la concentration en nombre des aérosols. Il est calculé comme étant le forçage en ciel clair (forçage direct) et il vaut environ en moyenne 0.6 mWm^{-2} et possède une grande variabilité spatiale (figure 3.8 B). Il est donc considéré négligeable et n'est pas statistiquement significatif. La deuxième composante causant le forçage est celle due aux changements de la composition microphysique des nuages. Il serait estimé comme étant la différence entre le forçage total et celui en ciel clair et représente la somme du forçage semi-direct et indirect. Il vaut -1 Wm^{-2} en moyenne. Les forçages indirects et semi-directs dominent donc le forçage direct dans la CLM (figures 3.8 A et B).

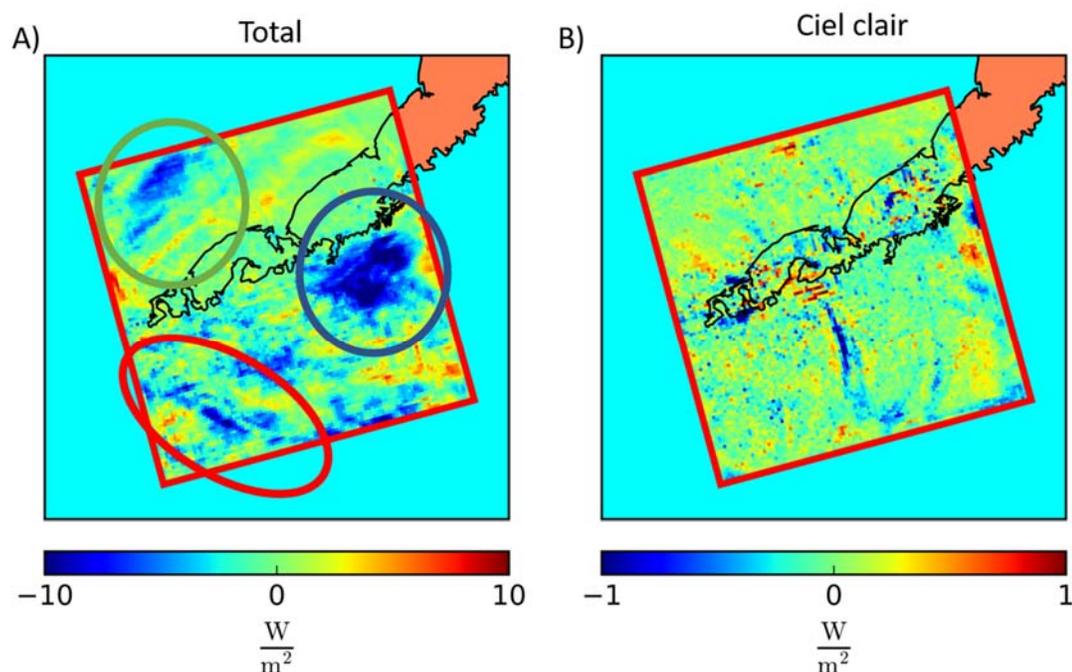


Figure 3.8 Moyenne temporelle du forçage radiatif des émissions de bateaux entre le 15 et 30 mars 2015 dans le domaine SMALL pour A) le forçage radiatif total (indirect+ semi-direct+ direct) et B) le forçage radiatif direct en ciel clair. Les cercles de couleurs représentent des structures identifiables utilisées à titre de référence dans le texte⁹.

3.4 Les propriétés macrophysiques d'une couche limite perturbée par les bateaux

Le premier impact des bateaux sur l'atmosphère à avoir été documenté est la formation de nuages à la suite du passage des bateaux (*shiptracks*) par Conover (1966). Même si ce sont des phénomènes de la fine échelle (2 km), inférieure à la résolution utilisée dans cette étude, nous visons tout de même à étudier l'impact des bateaux à l'échelle moyenne de 4 km de notre modèle. La fraction nuageuse dans le domaine SMALL est

⁹ Voir le chapitre 2 pour la méthodologie du calcul du forçage radiatif.

augmentée en moyenne, entre le 15 et 30 mars 2015, d'un facteur de 5% en moyenne, surtout au sud des Aléoutiennes (figure 3.9), surtout là où les émissions de bateaux sont maximales (figure 3.3). Au nord, la fraction nuageuse est faiblement augmentée, surtout dans les plus hauts niveaux, ce qui concorde avec le transport des aérosols observé dans les plus hauts niveaux de la CLM (figures 3.6, 3.7, 3.9 C et D). L'augmentation de la fraction nuageuse n'est pas directement colocalisée avec le maximum d'émissions, principalement dans les deux premiers niveaux du modèle (sous 300 m, figure 3.9 A et B). Elle est maximale au quatrième niveau du modèle, qui coïncide avec le sommet de la couche limite moyenne, situé à une hauteur de 500 m (figure 3.6, 3.9 D). L'explication la plus plausible à cette observation est l'entraînement des aérosols et des gouttelettes de nuage près du sommet de la CLM vers la troposphère libre, sursaturée, supposée vierge expliquant ainsi la création de nuages à ce niveau, qui semble parallèle au passage fréquent de bateaux (cercle jaune sur la figure 3.9 D) et en accord avec les apports d'aérosols dans la troposphère libre (figures 3.6, 3.7). À tous les niveaux, la fraction nuageuse augmente dans un système à l'est du domaine identifié par un cercle noir sur la figure 3.9 D), non colocalisée avec les émissions de bateaux et qui pourrait être lié à des effets indirects et locaux. Ce système explique toutefois le forçage radiatif négatif observé au même endroit à la figure 3.8. Le changement dans la fraction nuageuse diminue graduellement par la suite, au-dessus de 700 m (non montré).

Les bateaux parviennent aussi à augmenter faiblement la hauteur des sommets des nuages en moyenne de 3,9 m, passant de 732,3 m à 736,2 m lors de situations de basse pollution anthropique (tableau 3.2). Cette différence est faible, mais statistiquement significative à plus de 99%, pour un test T de Welch bilatéral pour deux échantillons indépendants de variances différentes. À titre de comparaison, Chen et al. (2015) a démontré à l'aide de données satellitaires qu'en présence de *shiptracks*, il y a une augmentation moyenne de la hauteur des nuages de 4 m dans des conditions nuageuses dites « cellules fermées » et de 46 m pour les conditions dites « cellules ouvertes ». La

différence de hauteur observée par Chen et al. (2015) est similaire aux conditions nuageuses de type « cellules fermées », mais elle est différente des conditions nuageuses de types « cellules ouvertes ». Cela peut s'expliquer en partie par la variété de conditions météorologiques de notre étude et aussi par la faible résolution de notre modèle ne permettant pas de bien résoudre le type de cellules de cumulus (ouvertes ou fermées) par comparaison aux observations satellitaires de Chen et al. (2015), ces derniers possédant une bonne résolution spatiale. La figure 3.9 D) donne toutefois partiellement du crédit aux observations de Chen et al. (2015) puisqu'il est observé que la partie nord des Aléoutiennes, associée souvent à un régime d'advection d'air froid au-dessus d'un plan d'eau et d'un régime convectif à cellule ouverte, montre une augmentation de la couverture nuageuse autour de 400 m d'altitude (4^e niveau modèle).

Catégoriser les effets de l'injection de NC dans les nuages est difficile à simuler pour les paramétrisations à une échelle moyenne (Wang, 2011). Comparer les propriétés microphysiques entre le même point de grille pour SHIP et NOSHIP à un temps donné peut ne pas donner de bons résultats fiables en raison des changements non linéaires dans la circulation atmosphérique et également en raison de l'éventualité d'un délai dans la nucléation due au changement dans l'hygroscopicité. Ainsi, utiliser les quantités intégrées selon la verticale, telles que le contenu en eau liquide intégré sur toute la colonne atmosphérique (appelé le LWP, pour *liquid water path*), donne une première estimation des impacts microphysiques des bateaux sur l'atmosphère. Le changement en LWP moyen entre les deux simulations est majoritairement positif, en moyenne de $1.5 \frac{\text{g}}{\text{m}^2}$ et le changement va jusqu'à $15\% \left(3 \frac{\text{g}}{\text{m}^2}\right)$ dans le sud du domaine (figure 3.10 A). Le nord du domaine subit un impact plus faible dû à la fréquence de masses d'air froides, de nuages de glace et de faibles émissions navales. Il est aussi important de noter qu'il y a, à certains endroits, une différence moyenne négative. Une explication plausible est que l'ajout d'aérosols dans l'atmosphère peut créer des nuages plus tôt dans la simulation SHIP que dans la simulation NOSHIP, inhibant la formation de nuage en aval du vent.

Le changement du LWP peut être expliqué principalement par deux processus différents. D'abord, un changement dans la fraction nuageuse par les aérosols qui rajoute de l'eau (figure 3.10 D). Ensuite, l'injection des aérosols dans les nuages déjà présents entraîne une augmentation de la concentration en gouttelettes, une réduction de leur rayon moyen (Twomey, 1959), des précipitations réduites, un temps de vie prolongé et conséquemment un plus grand contenu en eau liquide (figure 3.10 C, Albrecht, 1989). Environ 10% du changement total du LWP est dû à la production ou à la suppression de nuages dans les colonnes (figure 3.10 D, analogue à la figure 3.9), tandis que 90% du changement est dû à l'effet Albrecht, les autres effets indirects et aux effets non linéaires (figure 3.10 C). Cela laisse donc supposer que les bateaux prolongent la durée de vie des nuages et augmente le contenu en eau liquide de ceux-ci, conformément au second effet indirect des aérosols.

Pour connaître l'effet qu'ont les bateaux sur le LWP et sur le bilan radiatif, la connaissance de l'impact moyen ne fait qu'effleurer la compréhension des paramètres microphysiques mis en jeu. Le fait que l'augmentation du LWP soit liée en petite partie au changement dans la fraction nuageuse et en grande partie aux modifications microphysiques des nuages montre que les bateaux ont plusieurs effets sur les nuages dans l'atmosphère. La variabilité géographique prouve, entre autres, qu'en fonction des conditions chimiques et météorologiques non perturbées (c'est-à-dire ce qui arrive dans la simulation sans bateau), l'effet des bateaux sur l'atmosphère peut différer. Il faut donc quantifier ces effets plus en détail. La question posée ici est : quels sont les processus microphysiques perturbés suffisamment pour avoir cet effet sur le LWP ?

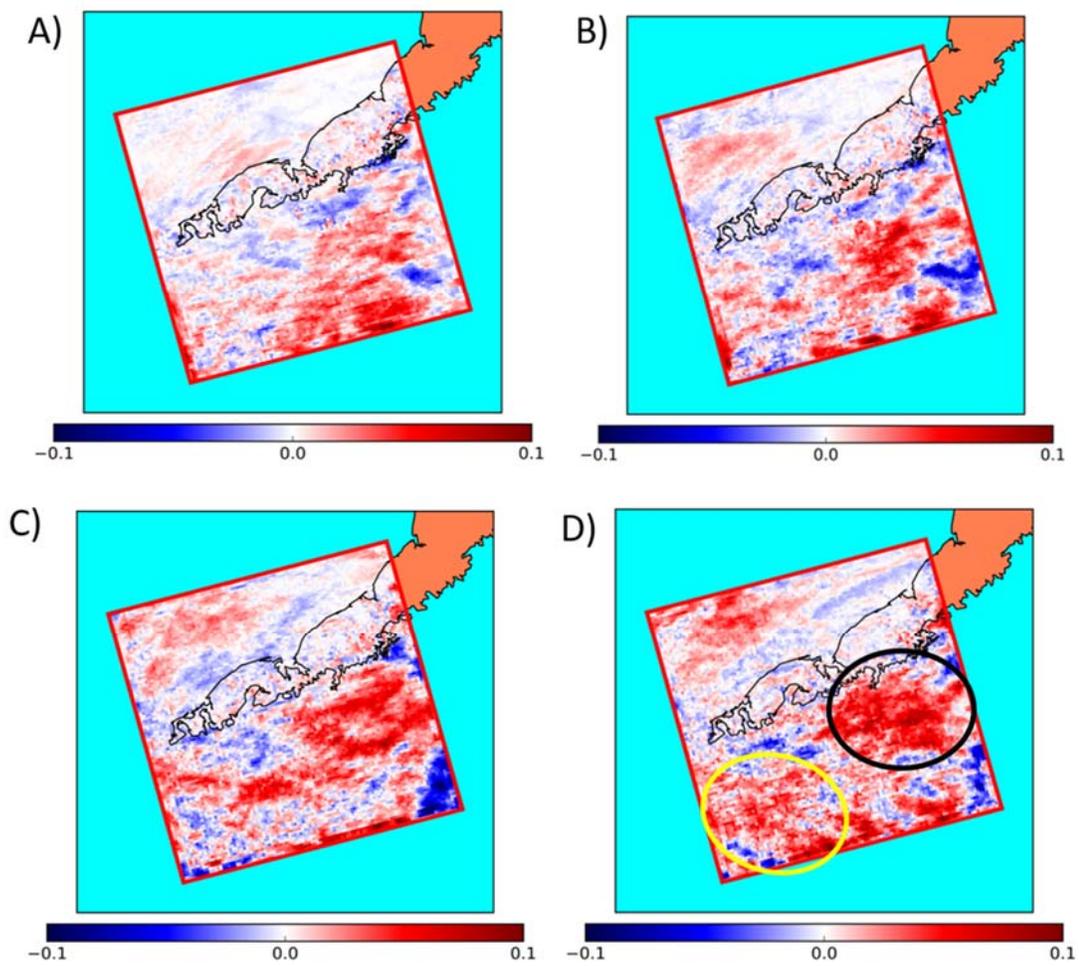


Figure 3.9 Changement moyen dans la fraction nuageuse dû aux bateaux pour les niveaux les plus bas du modèle dans le domaine SMALL. A) niveau 1, B) 2, C) 3 et D) 4. Le changement est calculé comme étant $\text{SHIP}_{\text{fraction nuageuse}} - \text{NOSHIP}_{\text{fraction nuageuse}}$. L'impact direct des émissions des bateaux sur la fraction nuageuse et le système secondaire discuté dans le texte sont encadrés respectivement en jaune et en noir.

Tableau 3.2 Extension verticale des nuages de la CLM dans les simulations ainsi que le rayon moyen des gouttelettes au sommet des nuages¹⁰.

Propriétés du nuage	NOSHIP	SHIP
Hauteur moyenne du sommet des nuages [m].	732,3	736
Rayon moyen des gouttelettes au sommet des nuages [μm].	35,8	35
Hauteur moyenne de la base des nuages [m].	322,7	326
Épaisseur moyennes des nuages [m].	409,6	410

¹⁰ Afin d'extraire le signal, les moments où la concentration en sulfate dans la simulation NOSHIP est plus grande que 0.01 ppmv (donc lorsque le domaine SMALL est fortement pollué par d'autres sources, anthropiques ou non, que les bateaux) n'ont pas été pris en considération.

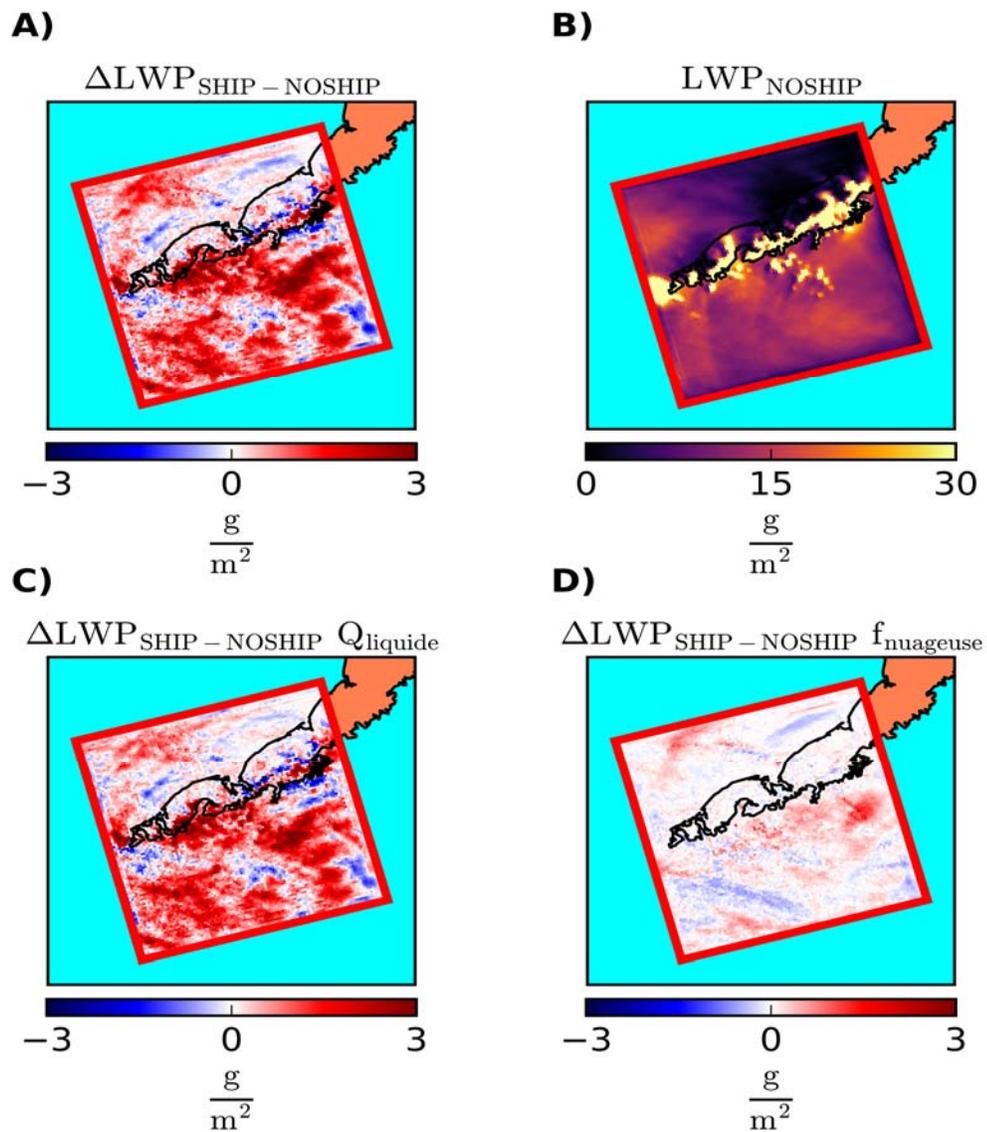


Figure 3.10 Changement moyen du contenu en eau liquide dans la colonne atmosphérique (LWP) entre la simulation SHIP et NOSHIP. A) $LWP_{SHIP} - LWP_{NOSHIP}$, B) LWP moyen de la simulation NOSHIP, C) $LWP_{SHIP} - LWP_{NOSHIP}$ dû à l'augmentation du contenu en eau liquide intranuageux (effets indirects des aérosols sur les nuages) et D) $LWP_{SHIP} - LWP_{NOSHIP}$ dû au changement dans la fraction nuageuse.

3.5 Propriétés des nuages de la couche limite marine

Contrairement à leurs homologues continentaux, les nuages de CLM ont un fort contenu en eau liquide, une faible concentration en gouttelettes de nuages et une plus grande taille de gouttelettes (Miles et al., 2000). Le tableau 3.3 compare la moyenne des caractéristiques microphysiques des nuages dans la CLM au sud des Aléoutiennes en comparaison avec les données de Miles et al. (2000), qui quantifie leurs données en effectuant une moyenne de données d'observations provenant de plus de 10 études différentes de stratocumulus marins et continentaux (Miles et al., 2000). Nos simulations sous-estiment la concentration en gouttelettes d'un facteur 4, estiment bien la taille des gouttelettes et le rapport de mélange est sous-estimé du tiers (tableau 3.3). Les données de référence possèdent cependant une grande variabilité entre chaque étude considéré dans la moyenne utilisée dans notre référence (tableau 2, Miles et al., 2000). On peut donc considérer nos données dans un ordre de grandeur réaliste par rapport aux observations.

Le xylène est un COV de source exclusivement anthropique. Il est peu réactif et possède un long temps de vie. Il peut donc être utilisé en tant que traceur de pollution anthropique dans une masse d'air. En utilisant une valeur seuil de xylène témoin de 4.5 ppbv pour délimiter les cas pollués des cas non pollués anthropiquement dans la simulation NOSHIP (sans bateaux), on peut voir que l'effet des bateaux sur la concentration et la taille des gouttelettes de nuage est significativement plus grande lorsque la masse d'air est considérée comme étant non polluée (tableau 3.3). Le critère de 4,5 ppbv a été sélectionné selon l'étude de Millet et al. (2004), qui ont analysé et catégorisé des masses d'air à Trinidad Head, Californie, une masse d'air polaire maritime (quoique beaucoup plus chaude). En accord avec la figure 3.10 et le second effet indirect (Albrecht, 1989), la simulation SHIP augmente la concentration en gouttelettes des nuages, réduit la taille de ces dernières ainsi que celles des gouttelettes de pluie, augmentant le rapport de mélange en eau nuageuse (tableau 3.3). Sur une

échelle spatiale, la concentration en nombre de gouttelettes augmente jusqu'à $8 \frac{\text{gouttes}}{\text{cm}^3}$ près du maximum du passage des bateaux (figures 3.11 A et B). À quelques endroits, la concentration nette de gouttelettes dans une colonne diminue (figures 3.11 A et B), mais peu de points de grilles de la CLM subissent une diminution de leur concentration en nombre de gouttelettes de façon statistiquement significative (figure 3.11 B). Les bateaux ont également un effet à l'échelle moyenne, puisque l'effet des bateaux sur la concentration de gouttelettes au nord des Aléoutiennes est majoritairement positif, même si les émissions de bateaux y sont quasi nulles (figure 3.3, figures 3.11 A et B). Puisque les aérosols sont également transportés à la verticale (figure 3.6), les bateaux ont également des effets dans les plus hauts niveaux de la CLM sur la concentration en gouttelettes de nuage, le diamètre de celles-ci et le rapport de mélange en eau liquide (figure 3.12 A, B et C). Le premier effet indirect des aérosols sur les nuages est bien conforme à notre hypothèse, c'est-à-dire qu'aux endroits où la concentration en gouttelettes est augmentée ou diminuée, leur diamètre est diminué ou augmenté respectivement (figure 3.12 B, C et A respectivement). Le rapport de mélange, lié au second effet indirect et au LWP, est plus difficilement détectable en raison des nombreux effets non linéaires (figure 3.12 A). Dans les trois premières couches du modèle, la concentration en gouttelettes de nuage a augmenté dans toute la trajectoire, coïncidant avec la hauteur de la couche limite moyenne (400 m, voir figure 3.6). Au-dessus du 3^e niveau du modèle (donc, lorsque la CLM est plus élevée que la normale), la concentration de gouttelettes diminue, particulièrement dans le côté est de la trajectoire, en accord avec la figure 3.6. En fait, ce phénomène se produit au sommet des nuages de la CLM, puisqu'une augmentation nette de leur taille de plus de $0,9 \mu\text{m}$ est observable au sommet des nuages dans des situations de basse pollution anthropique (tableau 3.2, figure 3.13). Cela réduit alors l'albédo du nuage et explique partiellement la variabilité observée dans le bilan radiatif aux courtes longueurs d'onde (figure 3.8). Chen (2012) a révélé une diminution de l'albédo lors de passages de bateaux dans 30 % des cas de type nuages de type cellule « fermée », due à l'évaporation des

gouttelettes. Or, même si la résolution du modèle n'est pas suffisante pour résoudre les détails de telles structures nuageuses, la situation synoptique (basse pression dans le cas de notre étude) apporte davantage de nuages couvrant l'ensemble des mailles du domaine, telles des cellules « fermées » que des nuages de taille sous maille à cellules de type « ouverte ». Cela peut donc expliquer en partie pourquoi l'impact des bateaux sur le bilan radiatif aux courtes longueurs d'onde est très variable (figure 3.8).

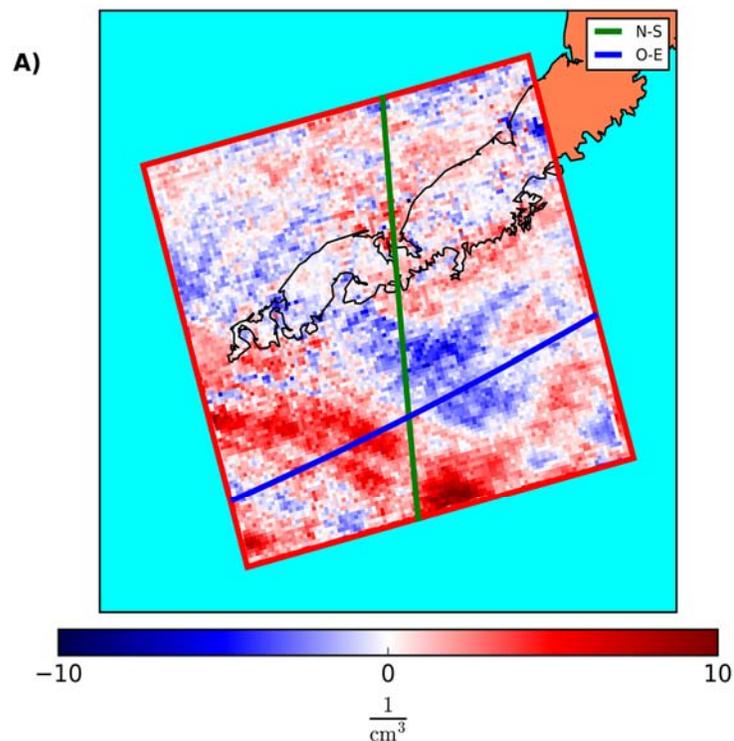


Figure 3.11 Modification moyenne de la concentration en gouttelettes de nuages dans la CLM ($\text{SHIP}_{\text{concentration}} - \text{NOSHIP}_{\text{concentration}}$). Le changement est calculé seulement lorsqu'un nuage est présent dans les deux simulations aux mêmes endroits et simultanément. En bleu : trace O-E des figures 3.6 et 3.12, en vert : trace N-S de la figure 3.6.

Tableau 3.3 Propriétés microphysiques moyennes des nuages dans les simulations pour toutes les données et les données polluées¹¹ en comparaison des observations obtenues par la table 3 de Miles et al. (2000).

Base de données	Concentration en gouttelettes de nuages [cm ⁻³]	Rayon des gouttelettes de nuage [um]	Rayon des gouttelettes de pluie [um]	Rapport de mélange [g/m ³]
NOSHIP	18,17	22,6	64	0,077
SHIP	19,09	22	63,3	0,081
NOSHIP non pollué	6,84	25,81	77,38	0,049
SHIP non pollué	10,00	24,08	68,85	0,062
Stratocumulus marins (Miles et al., 2000)	74	14,2	-----	0,18
Stratocumulus continentaux (Miles et al., 2000)	288	8,2	-----	0,19

¹¹ Les masses d'air non polluées sont considérés comme possédant une concentration en xylène < 4.5 ppv. Ces critères sont basés sur l'analyse d'une masse d'air polaire maritime à Trinidad Head, Californie, USA (Millet et al., 2004).

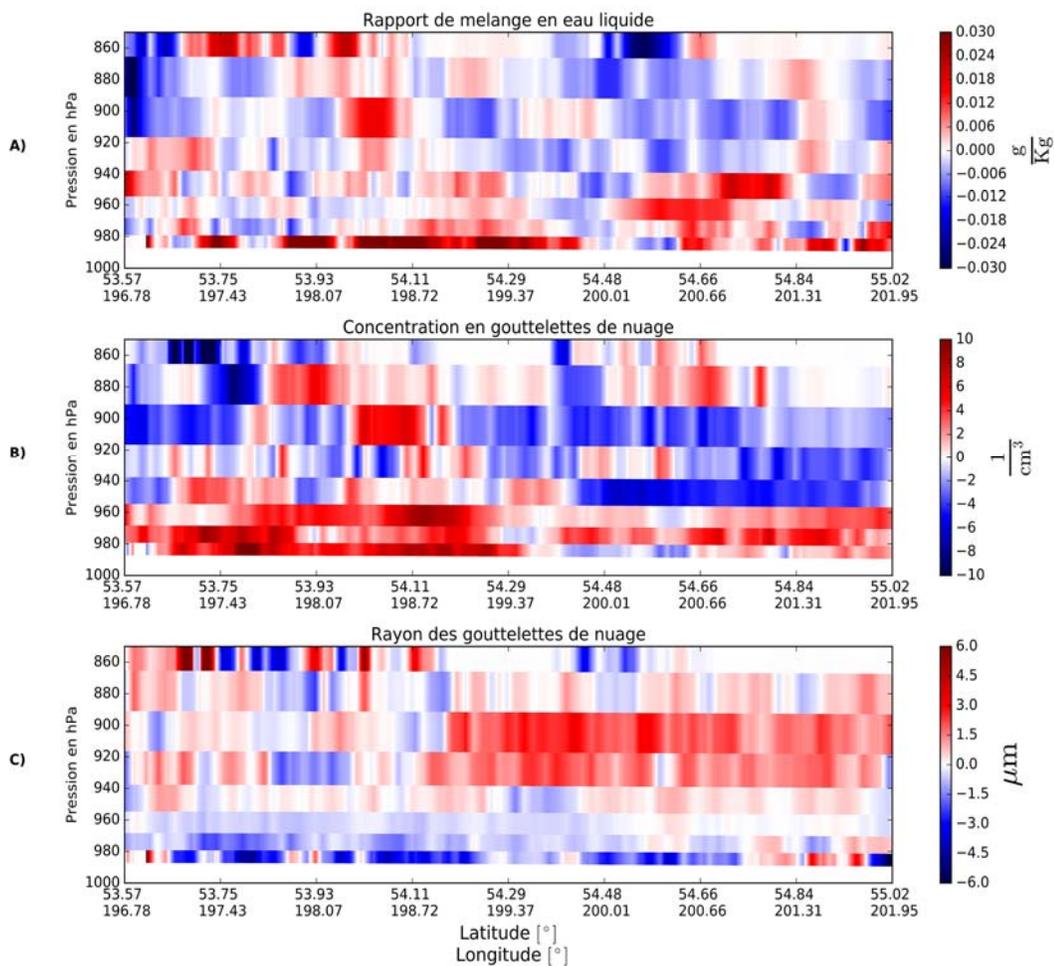


Figure 3.12 Coupe verticale (O-E) du changement dans A) le rapport de mélange, B) la concentration en gouttelettes de nuage et C) le rayon des gouttelettes de nuages entre la simulation SHIP et NOSHIP ($SHIP_{quantité} - NOSHIP_{quantité}$). Le changement est calculé seulement lorsqu'un nuage est présent dans les deux simulations aux mêmes endroits et simultanément. (Voir figure 3.11 pour la trajectoire de la trace).

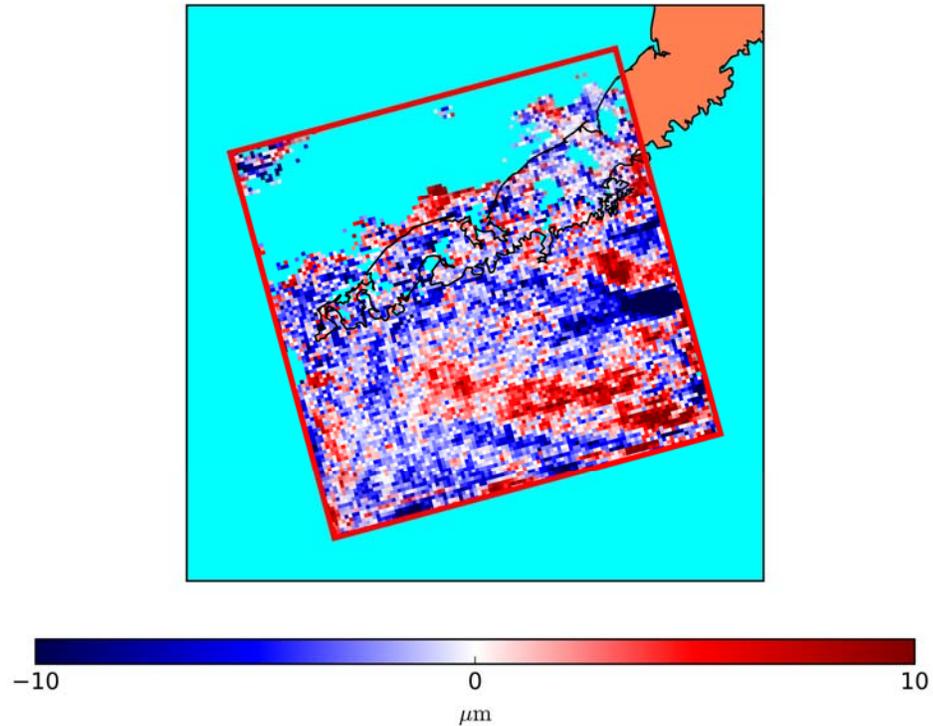


Figure 3.13 Changement de la taille (rayon) des gouttelettes de nuages à leur sommet entre les deux simulations ($\text{SHIP}_{\text{sommet}} - \text{NOSHIP}_{\text{sommet}}$)¹². Les points de grille possédant moins de 10 valeurs servant à la moyenne temporelle ne sont pas montrés.

¹² Afin d'extraire le signal, les moments où la concentration en sulfate dans la simulation NOSHIP est plus grande que 0.01 ppmv (donc lorsque le domaine SMALL est fortement pollué par d'autres sources, anthropiques ou non, que les bateaux) n'ont pas été pris en considération.

3.6 Sensibilité de l'atmosphère

Les effets qu'ont les bateaux autour des Aléoutiennes sur les caractéristiques microphysiques des nuages est important. La variabilité spatiale et géographique implique une sensibilité potentielle des nuages aux bateaux selon l'environnement dans lequel ces nuages se trouvent. Par exemple, il est peu probable que les bateaux aient un effet sur les nuages dans une situation de forte pollution à faible contenu en eau liquide, puisque les aérosols présents agissent déjà comme NC, saturant le milieu par effet de seuil. L'injection des aérosols affecte donc peu la concentration et la taille des gouttelettes dans ce cas. À l'inverse, si la CLM est propre et à haut contenu en eau liquide, elle sera alors composée d'une faible concentration de grosses gouttelettes. La probabilité de voir un effet des bateaux par les aérosols injectés est forte, puisqu'ils risquent de partager le contenu en eau liquide disponible sur plusieurs gouttelettes, augmentant leur concentration et diminuant leur rayon moyen. Finalement, si la couche limite est vierge et saturée, mais à faible contenu en eau liquide, les aérosols risquent de condenser la vapeur d'eau saturée disponible et augmenter la fraction nuageuse. Les *shiptracks* en sont un bon exemple.

La figure 3.14 A) et C) montre clairement le premier effet indirect des aérosols sur les nuages puisqu'un changement dans la concentration en nombre d'aérosols (positif ou négatif) dû aux bateaux, amène à un changement de même signe de la concentration de gouttelettes dans le même point de grille et niveau vertical, avec un coefficient de corrélation R^2 variant entre 0.21, si le rapport de mélange en eau liquide est petit (ligne verte) et 0.43, si le rapport de mélange en eau liquide est grand (ligne bleue)¹³. Cette relation semble agir de façon linéaire (figure 3.14 C). Ces résultats sont en accord avec

¹³ Afin de mieux simuler l'injection d'aérosols dans un nuage, seuls les points de grille qui possèdent un nuage ayant un rapport de mélange ne variant pas plus de 10 % entre SHIP et NOSHIP au même moment et au même point de grille sont considérés. De plus, les points de grille à fortes vitesses verticales et les points de grille au nord des Aléoutiennes ne sont pas considérés.

ceux de Wang et al. (2011), qui, en appliquant des limites de contenu en eau liquide faibles et élevées semblables à celle de notre étude, ont conclu que les scénarios de CLM sont plus sensibles à l'injection d'aérosols dans les nuages à haut contenu en eau liquide que les scénarios à faible contenu en eau liquide. De plus, les nuages à haut contenu en eau liquide dérivent de la relation linéaire (figure 3.14 C), quoique leur dispersion statistique soit plus grande et moins significative. Cela indique l'implication possible d'autres processus microphysique lorsque le contenu en eau liquide devient plus grand.

Comme anticipé, la pente reliant l'injection d'aérosols dans la couche limite et le changement dans la taille des gouttelettes d'eau nuageuse est négative (figure 3.14 B). De plus la corrélation est moindre que celle en A) avec un coefficient de corrélation R^2 de 0.24, signifiant que l'effet d'injection d'aérosols dans les gouttelettes est de diminuer leur rayon, mais aussi que cet effet est sensible à plusieurs autres paramètres microphysiques tels que le 1^{er} et le 2^e effet indirect. Une tendance trimodale émerge (figure 3.14 B). Les nuages aux gouttelettes initialement petites (ligne verte), possédant une corrélation de 0.18, sont plus sensibles aux aérosols que le second mode visible, avec des gouttelettes initialement plus grandes. Les nuages à petites gouttelettes sont donc plus sensibles à l'injection d'aérosols que les nuages à grosses gouttelettes. Un 3^e mode semble également émerger au centre. Le coefficient de corrélation de la figure 3.14 A) augmente à 0.65 lorsque seules les gouttelettes plus petites que 0.18 μm sont considérées (non montré).

La corrélation entre l'ajout d'aérosols dans un nuage et le changement dans la concentration en gouttelettes dans ce même nuage est de 0,4 (figure 3.15 A). Puisque la composition chimique des aérosols est significativement changée (figures 3.6, 3.7), l'hygroscopicité individuelle des aérosols et la nucléation hétérogène des gouttelettes peuvent être affectées. Le changement dans le spectre chimique des aérosols dépend à la fois des émissions de bateaux, mais probablement aussi de la composition chimique

de l'air ambiant préalablement au passage des bateaux. Les masses d'air polluées d'origines anthropiques avant le passage des bateaux peuvent donc réagir différemment par rapport aux masses d'air vierges. La corrélation entre l'injection des aérosols dans un nuage et le changement des gouttelettes de nuage pour les cas pollués et peu pollués vaut 0,35 et 0,6 respectivement (figure 3.15 B et C). L'augmentation de la corrélation dans un cas peu pollué montre que l'influence des bateaux est supérieure dans les masses d'air vierges.

En résumé, pour qu'un bateau ait le maximum d'effet sur un nuage, les conditions météorologiques suivantes doivent donc être réunies :

- 1) Faible vitesse verticale : la région des Aléoutiennes, caractérisée par une absence de topographie complexe, est favorable à inhiber la turbulence et à réduire la vitesse verticale. Ceci n'est pas valide sur les îles et sur les côtes de l'Alaska en raison de la convection forcée par la topographie.
- 2) Une couche limite nuageuse, stable ayant un grand contenu en eau liquide et de petites gouttelettes.

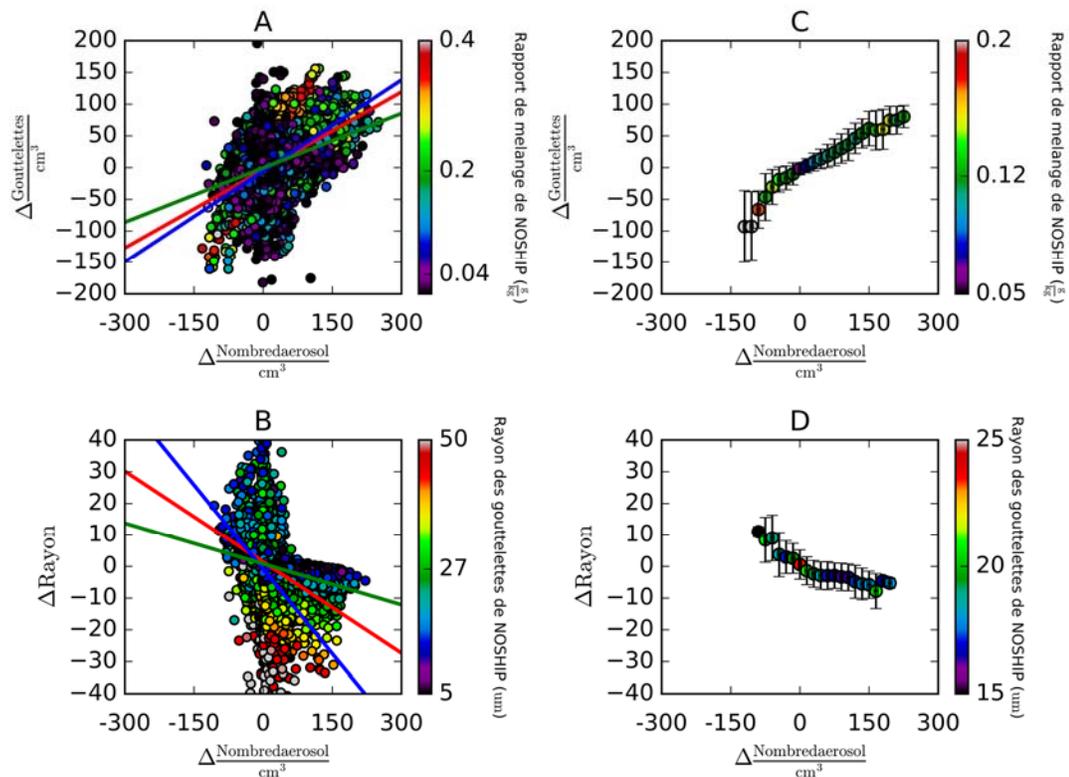


Figure 3.14 Effet de l'injection des aérosols provenant des bateaux ($\Delta_{\text{aérosols}} = (\text{SHIP} - \text{NOSHIP})_{\text{Aérosols}}$) sur A) la concentration en nombre de gouttelettes de nuages ($\Delta_{\text{Gouttelettes}} = (\text{SHIP} - \text{NOSHIP})_{\text{Gouttelettes}}$) et B) le diamètre des gouttelettes ($\Delta_{\text{Diamètres}} = (\text{SHIP} - \text{NOSHIP})_{\text{Diamètre}}$). Les couleurs des pastilles représentent en A) le contenu en eau liquide de NOSHIP et en B) la taille des gouttelettes. En A) les lignes rouge, bleue, verte représentent respectivement la régression linéaire pour tous les points de grille, les points de grille à grand ($> 1.5 \frac{\text{g}}{\text{kg}}$) et à petit ($< 1.5 \frac{\text{g}}{\text{kg}}$) contenu en eau liquide. En B) les lignes de couleurs représentent la respectivement la régression linéaire pour tous les points de grille, les points de grille à grande ($> 25 \mu\text{m}$) et à petite ($< 25 \mu\text{m}$) taille des gouttelettes de nuages. En C) et D) : moyenne de A) et B) respectivement sur l'axe des abscisses et ordonnées avec leurs barres de dispersion en axe des abscisses (± 1 écart-type).

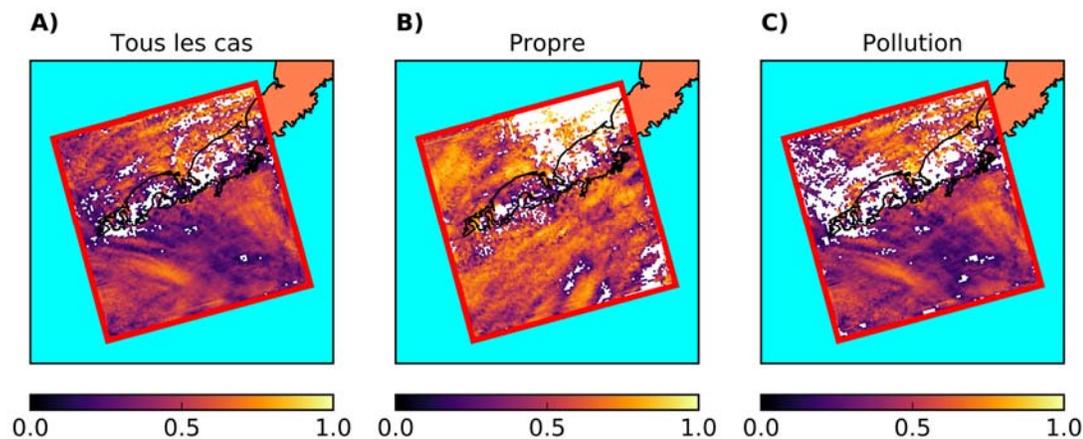


Figure 3.15 Corrélation temporelle entre Δ Gouttelettes et Δ Aérosols où Δ =SHIP-NOSHIP, en fonction de la concentration initiale en xylène dans la CLM pour a) tous les cas, b) les cas à masse d'air vierge ($[\text{xylène}] < 4.5 \text{ ppbv}$) et c) les cas à masse d'air polluée ($[\text{xylène}] > 4.5 \text{ ppbv}$).¹⁴ Seules les valeurs significativement significatives à plus de 95 % sont montrées, les autres données ont été blanchies.

3.7 L'effet des bateaux sur les précipitations.

Un des effets les plus importants observés dans cette expérience est l'augmentation du LWP dans une CLM polluée par les bateaux, corroborant l'effet Albrecht. L'augmentation du LWP peut être due à l'augmentation de la concentration en gouttelettes (figures 3.10 et 3.11), mais aussi par le changement dans le spectre de taille des gouttelettes, et du taux de précipitations. Ferek et al. (2000) ont montré que les bateaux suppriment la bruine dans le voisinage des *shiptracks*, changeant significativement le contenu en eau liquide dans les nuages.

¹⁴ Les masses d'air non polluées et polluées sont considérés respectivement comme possédant une concentration en xylène $< 4.5 \text{ ppv}$ et $> 4.5 \text{ ppbv}$. Ces critères sont basés sur l'analyse d'une masse d'air polaire maritime à Trinidad Head, Californie, USA (Millet et al., 2004).

Le module microphysique utilisé dans notre étude est à double moment (Morrison et al., 2009), et le spectre de taille des gouttelettes peut donc varier en fonction du contenu en eau liquide et de la concentration en nombre d'aérosols. Dans la distribution de tailles des gouttelettes de nuages, trois principaux modes émergent (figure 3.16 A). Tel qu'observé à la figure 3.11, la concentration en gouttelettes de nuage total augmente, en particulier pour le premier mode de petites gouttelettes, qui est doublé, ainsi que le second, qui augmente de 30 à 50 % (figure 3.16 A). La taille des gouttelettes, pour tous les modes, est diminuée, puisque le spectre de taille est décalé vers les plus petites gouttelettes. Pour le 3^e mode, la concentration totale de gouttelettes est en diminution entre SHIP et NOSHIP (figure 3.16 A). Cela peut s'expliquer par le processus d'autocollection des gouttelettes de nuages puisqu'il est moins efficace avec les plus petites gouttelettes qu'avec les moyennes. Ces résultats expliquent la diminution du rayon et l'augmentation la concentration de gouttelettes.

Selon la distribution normalisée par la concentration totale, le premier mode subit une réduction de taille et une plus grande partie des gouttelettes se situe dans le premier mode (figure 3.16 B). Le troisième mode subit une hausse dans sa fraction, son maximum passant de 0.015 à 0.020, mais il subit une diminution nette dans la taille de ses gouttelettes (figure 3.16 B). Ainsi, il semble que le processus d'autocollection reste assez efficace pour les gouttelettes de nuages même si la taille des gouttelettes diminue. Puisqu'il y a un changement significatif dans le spectre de taille des gouttelettes de nuages et que le 3^e mode semble affecté, il est pertinent de s'intéresser davantage au processus d'autoconversion en gouttes de pluie. Effectivement, la taille des gouttelettes de pluie diminue, passant de 70,5 μm à 67.8 μm (tableau 3.3). Près de 30 % des gouttelettes de pluie sont dans un régime de bruine ou trop petit pour précipiter pour le scénario NOSHIP et ce chiffre augmente à 45 % pour le scénario SHIP (figure 3.16 C). Ainsi, selon ces deux simulations, les bateaux ont comme effet net de réduire significativement la pluie au profit de la bruine au sud de l'Alaska, conformément aux observations de Ferek et al. (2000).

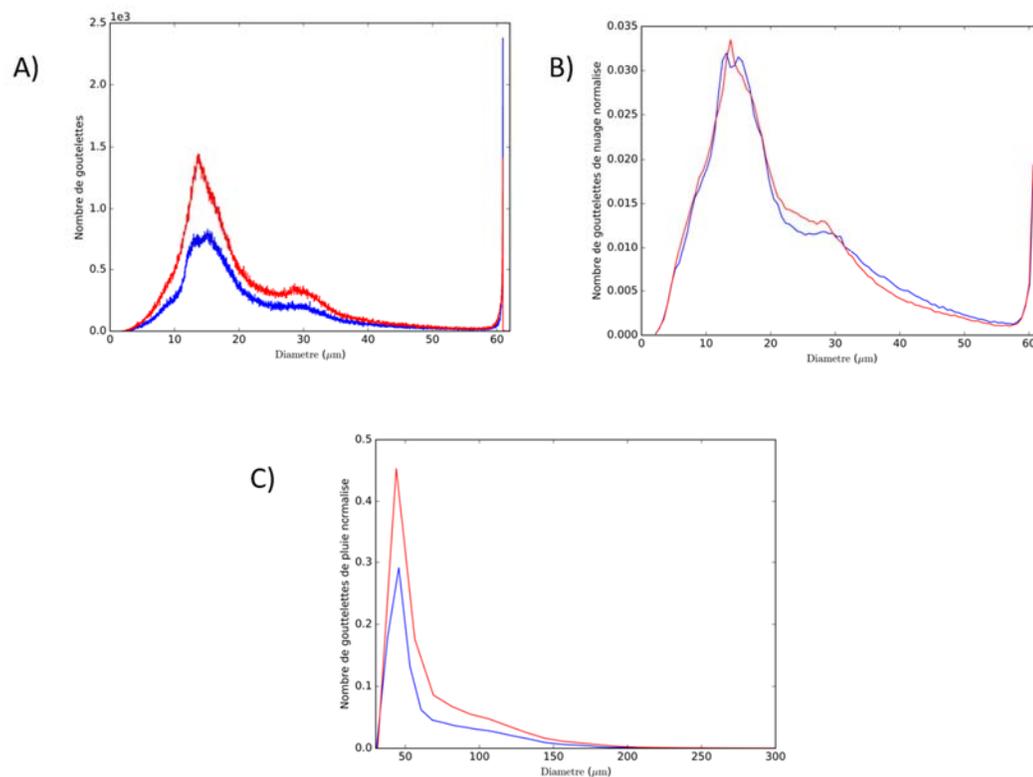


Figure 3.16 Distribution de taille des gouttelettes de nuage (A et B) et de pluie (C) dans la couche limite au sud des Aléoutiennes, pour la simulation SHIP (courbe rouge) et NOSHIP (courbe bleue). En A) : L’histogramme est divisé en 10 000 fenêtres de tailles équidistantes entre 2 et 62 μm . En B) : Concentration des gouttelettes normalisée par la concentration totale de gouttelettes et divisée en 100 fenêtres de taille équidistantes entre 2 à 62 μm . En C) : Comme en B, mais pour les gouttelettes de pluie et divisée en 100 fenêtres de 42 à 2000 μm ¹⁵.

¹⁵ Il existe des gouttelettes de pluie dont le rayon est plus grand que la limite de la figure C), mais leur fraction résiduelle est très petite (<0.001%), donc non affichée ici.

3.8 Performance de la chimie du modèle

Même si l'utilisation de modèles dans le cadre d'expériences météorologiques fournit une bonne estimation de l'atmosphère et des forçages anthropiques, les modèles comportent des erreurs. La comparaison des simulations est donc de mise. L'ordre de grandeur de la concentration en masse en sulfate simulée semble respecté (figure 3.17). Puisque la station d'observation d'ECCC, sur Whistler Mountain, est en altitude, il n'y a pas vraiment de différence entre SHIP et NOSHIP (figure 3.17). La concentration en masse en sulfate simulée est surestimée par rapport aux observations (figure 3.17). Il faut toutefois tenir en compte la limite de détection de l'appareil, pouvant expliquer partiellement la différence entre le modèle et les observations. La faible différence entre les deux simulations pour ce point de grille montre aussi que la surestimation n'est pas due aux bateaux et qu'elle est probablement due à d'autres sources potentielles, qui affectent à la fois les simulations avec et sans bateaux. Dans une certaine mesure, il est donc possible de dire que les processus responsables de la différence modèle-observation sont similaires entre les deux simulations. Les comparaisons SHIP-NOSHIP devraient donc être indépendantes des erreurs menant à la surestimation du sulfate et ainsi, dans ce rapport, la simulation du sulfate dans le modèle semble donc réaliste et conforme. Il n'a pas été possible d'obtenir des données d'observations directes à un point plus près du domaine SMALL ou du domaine STUDY.

3.9 Résumé

L'analyse du chapitre 3 a démontré une grande variabilité dans la réponse de l'atmosphère aux bateaux en ce qui a trait aux conditions météorologiques et chimiques environnantes. Une étude de cas peut donc s'avérer utile pour cibler davantage les effets des bateaux sur l'atmosphère et mieux départager les effets des bateaux de la

variabilité naturelle. Le chapitre 4 abordera ces questions par une étude de cas ciblant la période du 28 et 29 mars 2015.

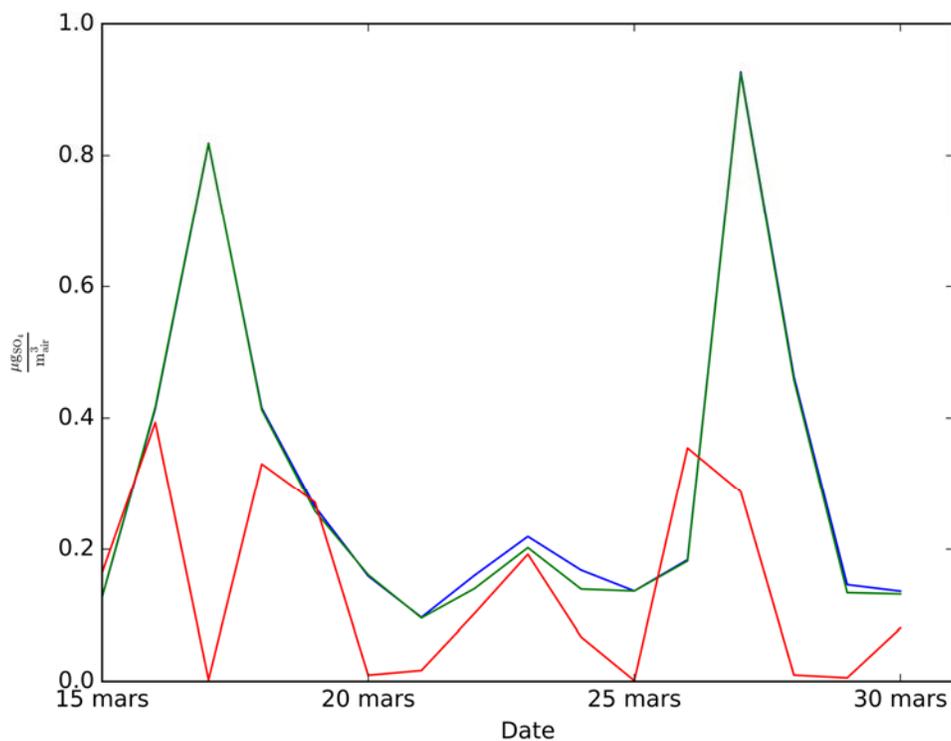


Figure 3.17 Concentration en masse en sulfate (en $\mu\text{g}/\text{m}^3$) simulée par NOSHIP et SHIP (courbe verte et courbe bleue respectivement) et observée par ECCC (courbe rouge), à Whistler Mountain, Altitude de 2182 m avec des filtres Teflon. Voir la figure 3.1 pour la localisation géographique. Voir chapitre 2 pour les détails sur la collecte de données.

CHAPITRE IV

ÉTUDE DE CAS

Pour dégager un signal de l'effet des bateaux sur l'atmosphère, le chapitre 3 s'est concentré sur la moyenne des champs, sur une quinzaine de jours. Ces jours étaient caractérisés par une panoplie de conditions météorologiques et physico-chimiques différentes. Tel que démontré dans le chapitre précédent, l'effet qu'ont les bateaux sur la microphysique des nuages varie selon les conditions météorologiques et chimiques initiales. Ainsi, afin de mieux distinguer le signal atmosphérique des bateaux, l'analyse détaillée d'un cas type sur une journée dont les conditions météorologiques et physico-chimiques sont plus uniformes et moins variables météorologiquement est nécessaire.

Ce chapitre se divise en 2 parties. Il donne d'abord un aperçu des conditions synoptiques des journées du 28 au 30 mars 2015 ainsi qu'une analyse de rétrotrajectoires des masses d'air. La deuxième partie se concentrera sur l'étude de l'effet des bateaux sur la chimie des aérosols et son impact possible sur la nucléation hétérogène des gouttelettes. La méthodologie de simulations de ce chapitre est expliquée en détail au chapitre 2 (section 2.2). Les deux simulations porteront le nom de SHIP et NOSHIP et seront effectuées sur le domaine STUDY (figure 2.1). La période de simulation est entre le 27 et le 29 mars 2015.

4.1 Analyse synoptique

Du 26 au 29 mars 2015, la situation synoptique générale est représentative de la période du 15 au 30 mars. Au cours de cette période, à 500 hPa, une onde courte traverse l'onde longue dominante, stationnaire au centre du Pacifique, et engendre une dépression majeure en surface au sud de l'Alaska (figure 4.1). Cette onde courte apparaît le 26 mars sur la côte est de l'Asie et traverse le Pacifique en 3 jours (figure 4.1) en suivant la circulation générale des vents à 500 hPa, selon la théorie quasi géostrophique classique. L'onde courte centrée à la sortie gauche du courant-jet se renforce et subit de la divergence de l'air en altitude et une profonde dépression à 975 hPa atteint son stade mature le 28, 29 et 30 mars 2015. Elle est alors en occlusion et elle est centrée sur le golfe de l'Alaska.

À l'approche de la dépression, les vents sont de l'est en surface et la masse d'air est déjà saturée en eau dans la couche limite (figure 4.2). Puisque la dépression est occluse et que le domaine d'intérêt se retrouve dans la ceinture d'écoulement d'air sec derrière le système, la majorité des nuages sont confinés dans les bas niveaux, dans une couche limite bien mélangée. La température est à près de 5 degrés en surface (figures 4.2 et 4.4), supportant des précipitations en phase liquide. La couche limite saturée, d'une hauteur de 1500 m, est dans des conditions favorables pour une analyse physico-chimique de l'air, puisqu'elle favorise l'accumulation de composés gazeux, aqueux et particuliers par sa stabilité thermique en son sommet. Les profils de vents et l'instabilité en surface favorisent également la présence de nuages convectifs le 29 mars à 12Z, avec la formation possible de nuages de glace au sommet. La présence de *shiptracks* (figure 4.3, image MODIS) indique que la couche limite est saturée et que la masse d'air est propre (sans polluants externes aux bateaux), car ces nuages se forment généralement lorsque la CLM est très saturée et possède peu d'aérosols (Durkee et al., 2000).

Puisque le modèle génère des fluctuations de variabilité naturelle et que l'analyse des processus instantanés requiert des données de modèle précises, il est important d'estimer les limites du modèle et de comparer les simulations aux observations. La résolution du modèle, de 4 km, est trop faible pour bien simuler les nuages à cellules ouvertes et les *shiptracks* (figure 4.3). Cependant, notre modèle résout mieux les nuages plus épais, moins convectifs et de grandes extensions horizontales à l'échelle synoptique comme les nuages à cellules fermées. En général, l'albédo augmente dans la simulation SHIP par rapport à NOSHIP. Le radar de CloudSat peut donner des informations sur les hydrométéores et la microphysique des nuages. L'extension horizontale des nuages est bien représentée entre les points (52,18 Nord; 205,09 Est) et (54,89 Nord; 203,77 Est) (figure 4.4). Les stratocumulus visibles par MODIS sont également visibles par CloudSat et simulés par le modèle, quoique ce dernier semble parfois exagérer la hauteur de leur sommet. La télédétection active satellitaire implique que les ondes émises par le radar sont soumises à l'atténuation dans l'atmosphère. Il est donc difficile de déterminer si la hauteur de la base des nuages est précise. Il est aussi notable que les mesures du *Cloud Profiling Radar* sont erronées dans le 1^{er} km près de la surface, dû aux interférences de cette dernière. De manière générale, le modèle surestime la concentration des gouttelettes, leur rayon et le contenu en eau liquide (figure 4.4, 4.5). Conformément à la théorie, la taille des gouttelettes est bien représentée au sommet des nuages, alors que c'est à la base du nuage que le contenu en eau liquide simulé est le plus proche des mesures. La simulation SHIP semble réduire le rayon moyen des gouttelettes et augmenter le contenu en eau, améliorant ainsi la capacité du modèle à simuler la situation microphysique et supportant la capture de l'effet des bateaux sur les nuages. On note que sur l'ensemble du domaine, la couverture glacée, soit la neige et les nuages glacés, est bien représentée dans le modèle, les maximums de glace étant relativement bien colocalisés par rapport aux observations (figure 4.5). Les bateaux ont pour effet d'augmenter légèrement le

contenu total en glace. Tel que vu dans les plans horizontaux (figure 4.3), le nuage au nord (à droite sur les figures 4.4 et 4.5) est sous-estimé par le modèle, puisqu'il simule un nuage liquide d'une épaisseur de 1500 m alors que les algorithmes de CloudSat montrent un nuage en phase mixte très épais (> 4000 m). Une source d'erreur probable de ce nuage et pour les stratocumulus de cette région serait leur proximité avec la bordure du domaine, réduisant les degrés de liberté du modèle.

En conclusion, les simulations du modèle représentent donc assez bien la situation synoptique, mais ont de la difficulté à représenter la position exacte des nuages. Le contenu en eau liquide et le rayon des gouttelettes sont généralement surestimés. L'analyse du chapitre 3 a également démontré que la concentration en sulfate était légèrement surestimée. Les variables de la microphysique sont dans un bon ordre de grandeur. Ainsi, l'impact des bateaux tiré de cette analyse nous apparaît qualitativement correct, puisque les erreurs sont plutôt bien corrélées pour les deux simulations. Cependant, nous n'avons pas pu déterminer statistiquement si la simulation SHIP résout mieux la situation synoptique et la microphysique des nuages que la simulation NOSHIP. De plus, la variabilité naturelle intramodèle peut camoufler la capacité véritable de notre modèle à bien simuler la microphysique des nuages. Ces résultats auraient pu être vérifiés plus efficacement par des prévisions d'ensembles afin d'éliminer la variabilité naturelle du modèle, mais cette étape n'a pas pu être effectuée dans le cadre de ce travail.

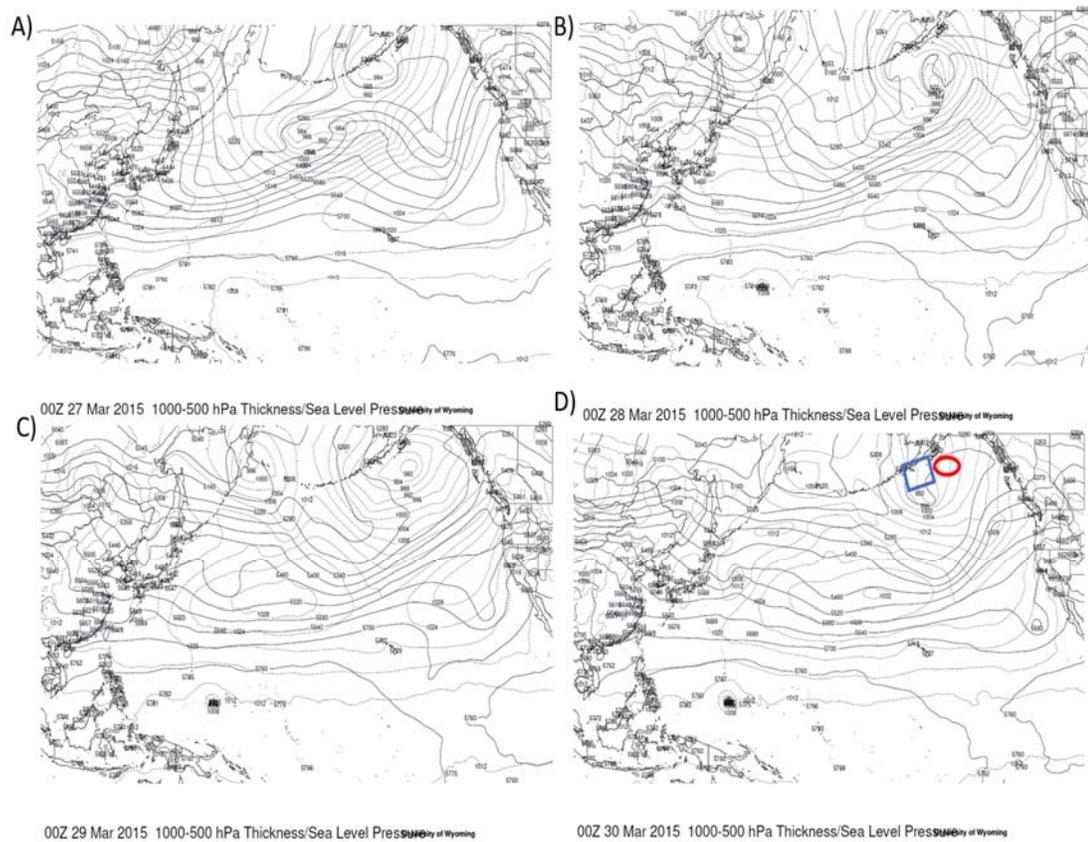


Figure 4.1 Carte synoptique du Pacifique Nord, entre le 26 et le 29 mars 2015. Les isobares de surface en hpa sont en lignes vertes pointillées et les isohypses d'épaisseur géopotentielle 1000 - 500 hPa en m sont en lignes bleues pleines. En bas à droite est encadré le domaine de la simulation en bleu et la localisation du profil vertical de Kodiak, Alaska, de la figure 4.2 est encerclée en rouge¹⁶.

¹⁶ Carte obtenue sur le site internet : <http://weather.uwyo.edu/>.

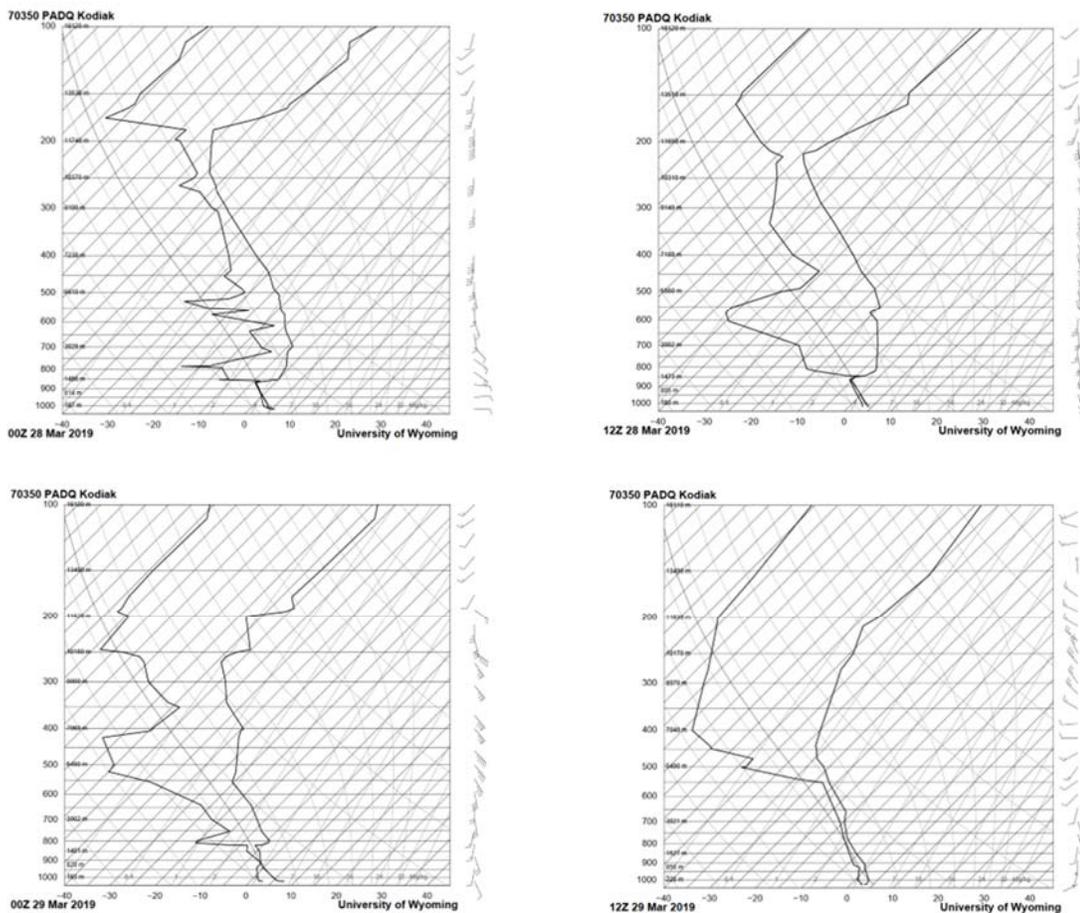


Figure 4.2 Évolution du profil vertical (selon la pression en hpa) de la température et de la température du point de rosée en °C, et des vents (en nœuds) à la station Kodiak, Alaska entre le 28 et 29 mars 2015, situé à 100 km au nord-est du domaine d'étude (voir figure 2.1 et 4.1, pour la localisation). Sur chaque profil, la ligne de droite représente la température, celle de gauche la température du point de rosée. Les vecteurs vents sont représentés dans la colonne de droite¹⁷. Voir figure 4.1 pour la localisation géographique.

¹⁷ Carte obtenue sur le site internet : <http://weather.uwyo.edu/>.

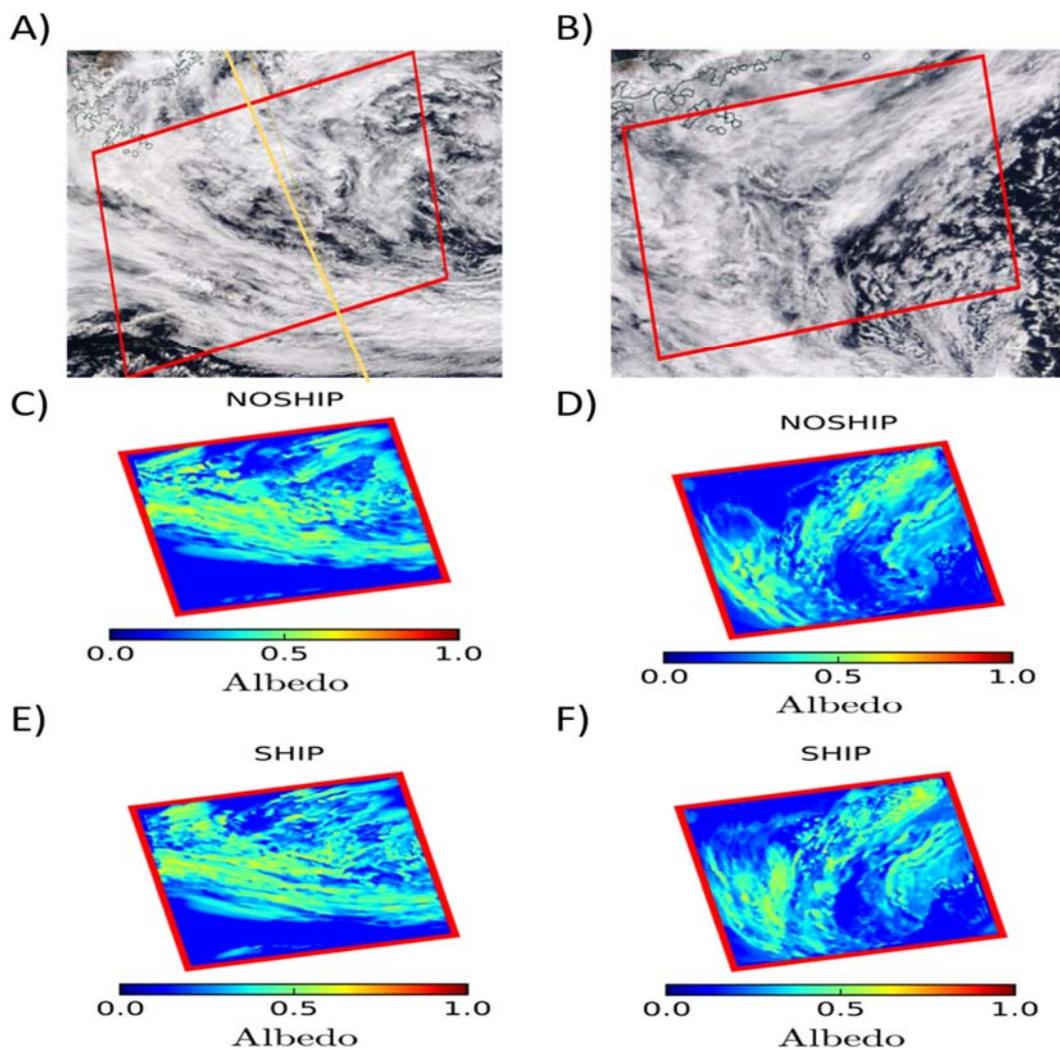


Figure 4.3 Réflectivité nuageuse observée et simulée dans le domaine STUDY. Image MODIS-Terra de la réflectivité (albédo)¹⁸ le A) 28 mars à 21 :30Z et B) le 29 mars à 22 :17Z avec, en jaune la trajectoire de Cloudsat le 28 mars 2015 à 22 :17Z . C) et E) Albédo le 28 mars à 21 :30Z selon les simulations NOSHIP et SHIP respectivement. D) et F) : similaire à C) et E), mais pour le 29 mars à 22 :30Z.

¹⁸ Voir chapitre 2 pour la description des produits MODIS. Carte obtenue sur le site internet : <https://worldview.earthdata.nasa.gov/>.

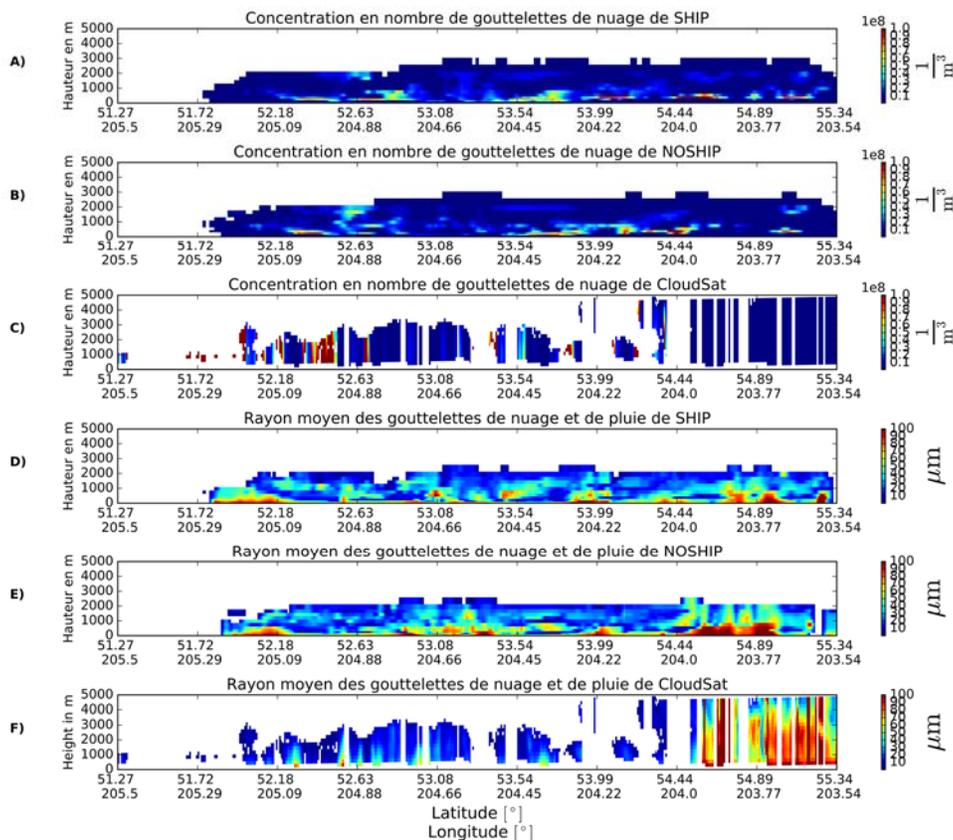


Figure 4.4 Concentration en gouttelettes de nuages (A, B et C) et leur rayon (D, E et F) vu par le produit 2B-CWC-RVOD de CLOUDSAT (A et D, voir chapitre 2) et simulé par SHIP et NOSHIP (B et C, E et F)¹⁹. Heure de passage approximative de CLOUDSAT le 28 mars 2015 à 22 :17Z. Voir la figure 4.3 pour la trajectoire.

¹⁹ La concentration en gouttelettes est considérée comme répartie uniformément dans toute la colonne par le produit 2B-CWC-RVOD. Voir le chapitre 2 pour les détails sur les produits de CLOUDSAT.

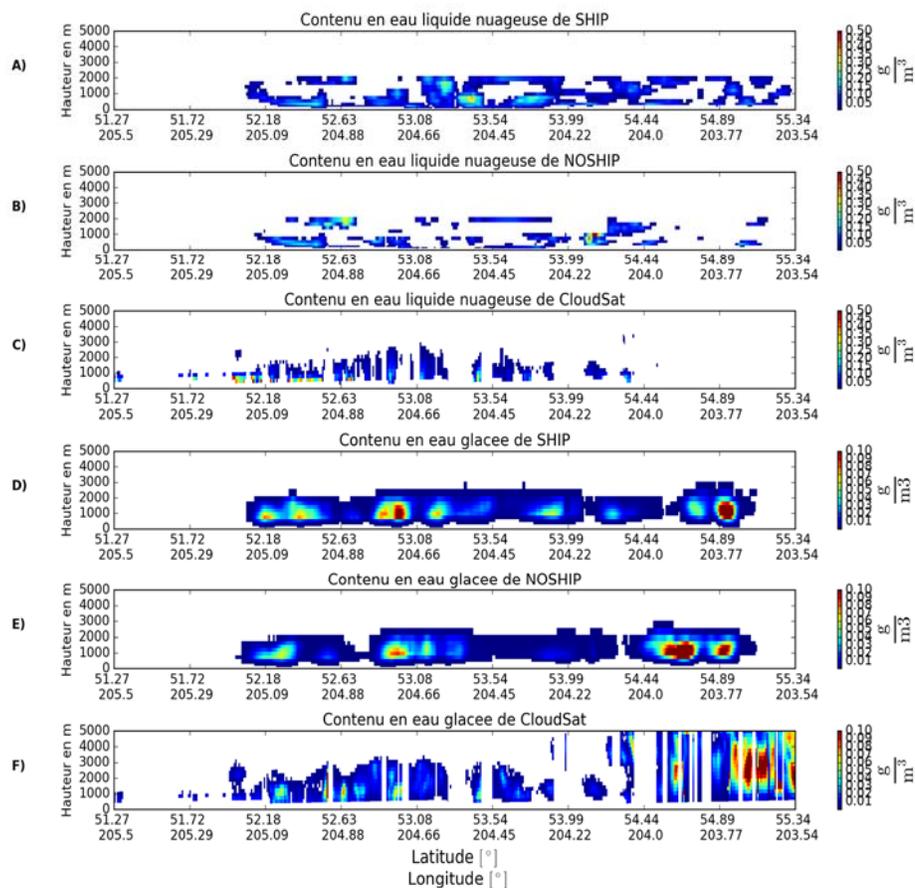


Figure 4.5 Contenu en eau liquide des nuages (A, B et C) et en eau glacée (D, E et F) vu par le produit 2B-CWC-RVOD de CLOUDSAT (A et D) et simulé par SHIP et NOSHIP (B et C, E et F)²⁰. Heure de passage de CLOUDSAT approximative le 28 mars 2015 à 22 :17Z. Voir la figure 4.3 pour la trajectoire.

²⁰ Voir le chapitre 2 pour les détails sur les produits de CLOUDSAT.

La circulation synoptique indique que la masse d'air a possiblement voyagé sur une grande distance en peu de temps avant de se rendre au centre du domaine STUDY. Cependant, en conséquence des nombreux mouvements verticaux, l'origine de la masse d'air n'est pas évidente, à savoir si elle provient d'Asie, du centre du Pacifique ou du nord de l'Alaska. Pour évaluer la provenance de la masse d'air, le modèle de trajectoire HYSPLIT est utilisé à partir des analyses du modèle GFS (voir chapitre 2). Jusqu'à 14h00 AKDT²¹ le 29 mars, les masses d'air arrivant dans la CLM à 100 m et 500 m, proviennent surtout du golfe de l'Alaska et sont restées en surface depuis au moins 120 heures (figure 4.6). À partir de 14h00 AKDT, la provenance et la composition de la masse d'air ont possiblement changé, puisqu'une partie de la masse d'air de la couche limite a subi de la subsidence associée à la hausse des pressions à l'arrière du système dépressionnaire et une autre partie de la masse d'air est passée par la région portuaire d'Anchorage, une ville portuaire importante l'Alaska (figure 4.6). La masse d'air arrivant au centre du domaine STUDY avant 14h00 AKDT possède donc probablement une composition chimique différente de celle arrivant après 14h00 AKDT. D'abord, la première, ayant été longtemps en contact avec l'océan, devrait avoir une grande concentration en NaCl. Elle possède également une faible quantité de polluants anthropiques résiduels venant des puits de pétrole, liée au passage de la masse d'air 3 à 5 jours plus tôt, dans le golfe de l'Alaska (figure 4.6). La deuxième masse d'air a subi un mélange en partie d'air propre venant de la subsidence de la troposphère moyenne et en partie d'air pollué par la ville d'Anchorage. La masse d'air arrivant après 14h00 AKDT possède donc potentiellement une faible concentration de NaCl, mais un plus grand taux de polluants anthropiques que celle arrivant plus tôt à cet endroit (figure 4.6).

²¹ Heure locale de l'Alaska; UTC-8h

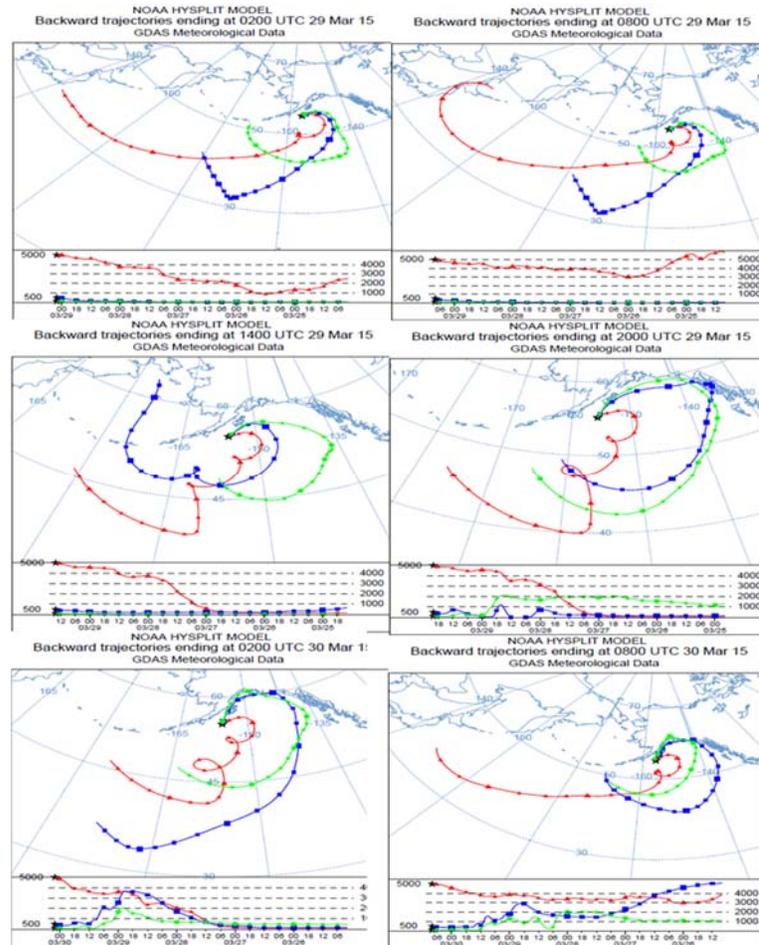


Figure 4.6 Rétrotrajectoires HYSPLIT arrivant au centre du domaine STUDY à différentes altitudes à 5000 m (lignes vertes), 500 m (lignes bleues) et 100 m (lignes rouges), le 29 Mars, entre 02h00 AKDT et 22h00 AKDT, par bloc d'arrivée de 6 heures²² (Draxler et Hess, 1997). Pour chaque bloc d'arrivée (chacune des 6 sous-figures), la position géographique passée de la masse d'air (la carte, section du haut) ainsi que l'altitude en m correspondante (le profil vertical, section du bas) est représentée aux 6 heures par des points pour les 120 heures précédant l'arrivée au centre du domaine STUDY pour ce bloc d'arrivée.

²² Figures générées sur le site : <https://www.arl.noaa.gov/hysplit/>.

4.2 Analyse chimique

La sensibilité de la relation aérosol-nuage face aux conditions chimiques de l'environnement sans bateau est grande (chapitre 3). Notamment, l'influence de la pollution anthropique, identifiée grâce au xylène, un traceur anthropique, s'est révélée importante (figure 3.15). De plus, la concentration en nitrate dans les aérosols varie de façon importante, alors que la concentration en sulfate ne change que légèrement (figure 3.5). Ceci a probablement des effets sur l'hygroscopicité des aérosols et sur la nucléation des gouttelettes. Comprendre les processus d'évolution physico-chimique des aérosols et leurs modifications sous le régime SHIP à travers l'analyse d'un cas d'étude est donc nécessaire.

Dans la couche limite, pendant la période d'étude, les aérosols analysés ont une composition moyenne de 88 % d'eau, 11% de NaCl, ainsi qu'environ 1 % d'un mélange de : SO₄, NH₄, NO₃, OC (non montré), ce qui concorde avec des simulations effectuées dans une couche limite marine sans l'effet des volcans et dont le NaCl et les composés du DMS sont les seules sources locales d'aérosols présentes dans la simulation sans bateaux.

La proportion des éléments traces varie temporellement dans les aérosols (figure 4.7). Le NO₃⁻ a une contribution relative plus grande pendant la nuit par rapport au jour et l'inverse se produit pour le SO₄²⁻, la production de ces deux constituants étant affectée par les radicaux sensibles photochimiquement (réactions R1.1 à R1.8).

Sous l'influence des bateaux, la composition des aérosols en OC et en NH₄ change très peu. La concentration en sulfate gagne en moyenne près de $0.01 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$, alors que celle du nitrate gagne entre 0.1 et $0.2 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$, soit un changement d'environ 1000% (figure 4.7). Les deux constituants augmentent de manière significative à plus de 99%, pour un test T de Welch bilatéral pour deux échantillons indépendants de variances différentes. Le

nitrate devient, dans la simulation SHIP, en proportion comparable au sulfate. Cela reflète les analyses du chapitre 3.

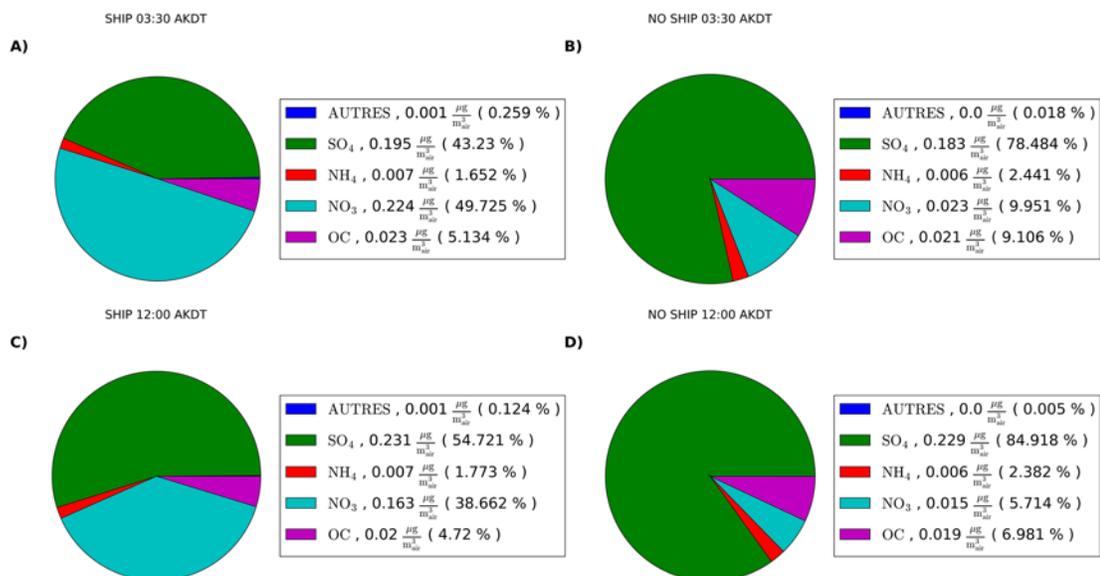


Figure 4.7 Éléments chimiques mineurs composant les aérosols en mode d'accumulation en $\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ dans la simulation SHIP (gauche) et NOSHIP (droite), à 3h30 AKDT (en haut) et 12h AKDT (en bas) moyenné dans la CLM dans le domaine STUDY. Les pourcentages indiquent la proportion que cet élément prend par rapport aux autres éléments mineurs.

La plupart des espèces composant les aérosols dans le mode d'accumulation ainsi que les principaux gaz et radicaux calculés dans la simulation présentent presque toutes un cycle diurne (figures 4.8 et 4.9). La concentration des radicaux NO₃ et OH, ainsi que le SO₂ et l'ozone augmente typiquement en accord avec la photochimie et la quantité de polluants plus abondants dans la simulation SHIP (figure 4.9).

Selon les analyses du chapitre 3, la différence relative de nitrate entre les deux simulations varie entre 300 et 600 %, alors que celle en sulfate change très peu, soit de l'ordre de 5 à 30 %. Pourtant, des études ont prouvé à maintes reprises que la concentration de SO₂ dans le sud de l'Alaska était fortement augmenté lors du passage des bateaux (Mölders, 2010). Dans le module CBM-Z, la voie principale pour la production de sulfate et du radical hydroxyle sont les réactions R1.1, R1.2 et R1.4. Deux hypothèses pourraient expliquer alors la faible transformation de SO₂ en sulfate, soient :

- 1) Une faible concentration du radical hydroxyle. Cette hypothèse est peu probable puisque l'OH, se formant via les réactions R1.1 et R1.2, est abondant et suit un cycle diurne (figure 4.10).
- 2) Une forte concentration initiale de SO₄²⁻ dans nos simulations. Le rapport de mélange de SO₂ simulé dans la simulation NOSHIP est de 1.5 x 10⁻³ ppbv, soit un ordre de grandeur moindre que le rapport de mélange du sulfate (figure 4.7 et 4.8). Ainsi, même avec une transformation efficace de SO₂ naval en sulfate, l'augmentation relative reste faible.

Contrairement au sulfate, le nitrate n'est pas limité par la quantité préexistante dans la masse d'air, puisqu'il est en très faible concentration dans la simulation sans bateaux (NOSHIP, figure 4.8). Le nitrate se forme pendant le jour via les réactions R1.5 à R1.8. Ses précurseurs sont les oxydes d'azote émis par les bateaux et ils sont émis dans le même ordre de grandeur que le dioxyde de soufre (figure 3.3). La concentration en particules de nitrate doit donc croître pendant la journée. Or, le NO₃ et le HNO₃ sont en décroissance jusqu'au milieu de la journée (figures 4.8 et 4.9), cela concorde avec l'analyse synoptique précédente, puisque les rétrotrajectoires HYSPLIT ont démontré que la masse d'air arrivant dans le domaine provient d'abord de l'océan et du golfe de l'Alaska (figure 4.6). Cette hypothèse est renforcée par la similitude de l'évolution temporelle du OC et du NH₄⁺ deux éléments chimiquement inactifs, qui diminuent

également en début de journée, suggérant l'existence d'un puits pour les polluants. À partir de la mi-journée, la masse d'air arrivant au centre du domaine subit une subsidence importante, mais elle passe également par la région d'Anchorage (figure 4.6). L'arrêt de la décroissance de la concentration du NO_2 , du NO_3^- et du HNO_3 vers le milieu de la journée (figures 4.8 et 4.9) peut donc être associé au passage de la masse d'air dans la région urbaine d'Anchorage. Pendant la nuit, contrairement au NO_2 et au SO_4^{2-} , le nitrate continue d'augmenter, par l'entremise de N_2O_5 et du radical NO_3 , via les réactions R1.7 et R1.8 (figures 4.7 et 4.8).

L'augmentation relative de sulfate et de nitrate semble donc sensible à la composition de la masse d'air initiale. Puisqu'il est possible d'utiliser le xylène comme traceur indicatif de la pollution anthropique, il est possible de déterminer si certains gaz ont une origine anthropique ou non. La corrélation entre le sulfate et le xylène, dans la simulation NOSHIP, d'une valeur de 0.81 (tableau 4.1), montre que le sulfate est probablement d'origine anthropique. La corrélation non significative entre le nitrate et le xylène de NOSHIP (tableau 4.1) indique que le nitrate déjà présent dans la masse d'air n'est probablement pas d'origine anthropique, et que le nitrate dans SHIP provient en majeure partie des bateaux. Puisque les bateaux émettent des COVs et qu'une partie de ces COVs sont transformés en xylène, la corrélation entre ces trois espèces augmente dans la simulation SHIP (tableau 4.1). La différence en sulfates $\text{SHIP}_{\text{SO}_4^{2-}} - \text{NOSHIP}_{\text{SO}_4^{2-}}$ (figure 4.8) est plus grande lorsque la concentration en xylène est plus faible (figure 4.9). Les bateaux ont donc un impact différent dans un cas de masse d'air polluée anthropiquement que dans des cas de contamination d'origines différentes. Cependant, même si le SO_4^{2-} présent est corrélé aux émissions anthropiques, il est tout de même possible qu'une partie du SO_4^{2-} provienne du DMS. Il faut donc nuancer nos conclusions, puisqu'il faudrait effectuer des tests de sensibilité sans DMS afin de pouvoir séparer l'effet du DMS de l'effet anthropique.

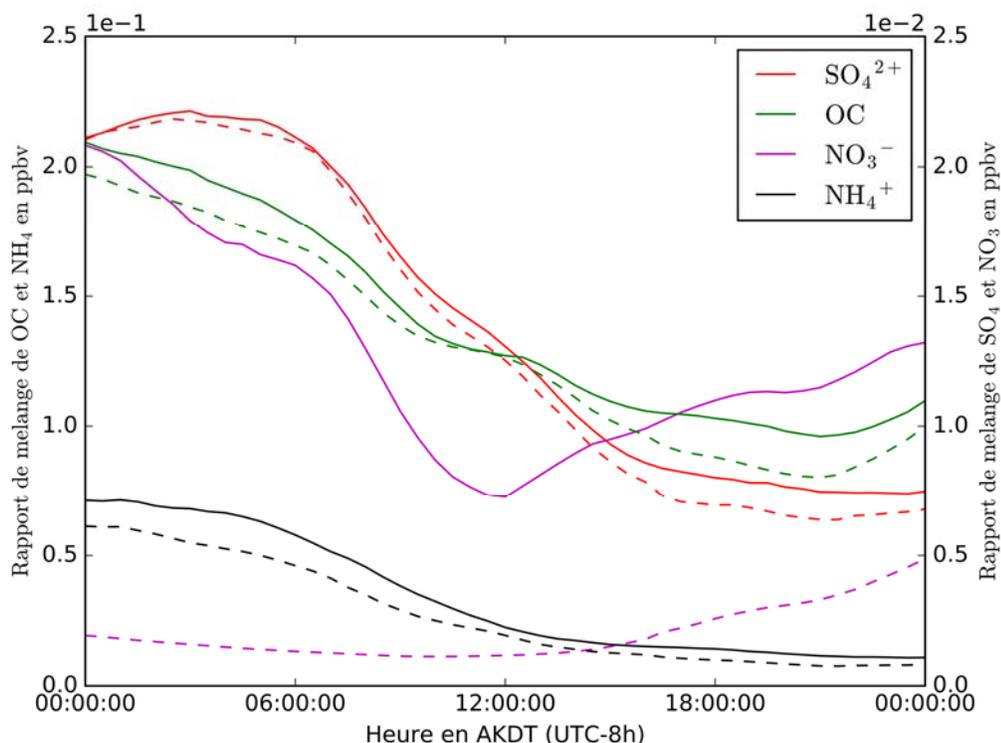


Figure 4.8 Évolution temporelle de la composition des éléments traces des aérosols en ppbv en mode d'accumulation le 29 mars 2015, moyenné dans la couche limite dans le domaine STUDY. SHIP est en ligne pleine et NOSHIP est en ligne pointillée.

L'hygroscopicité des aérosols est diminuée par le changement de la composition chimique (figure 4.10) particulièrement dans le mode d'accumulation (classes de taille 2 à 6). Puisque les bateaux ajoutent du sulfate et du nitrate (figures 3.2 et 3.6) dans un aérosol majoritairement composé d'un mélange interne de sel de mer et que l'hygroscopicité du sel (NaCl) est plus grande que celle du SO_4^{2-} et du NO_3^- (tableau 2.2), alors l'hygroscopicité résultante du mélange d'aérosols est réduite lors du passage des bateaux (figure 4.10). La variation temporelle de l'hygroscopicité des aérosols

démontre également que les masses d'air initialement plus polluées (plus grande concentration en xylène, figure 4.9) sont associées à une hygroscopicité plus basse (figure 4.10). Ceci est compatible avec l'interaction des émissions des bateaux via l'effet Twomey qui est plus important pour les masses d'air vierges (sans pollution anthropique autre que les bateaux, figure 3.15). Ces résultats démontrent alors une propriété importante de l'interaction des bateaux avec les aérosols et les nuages : alors que la concentration en aérosols a doublé, augmentant significativement l'effet Twomey, l'hygroscopicité individuelle des particules aérosols est diminuée, limitant par le fait même l'effet Twomey.

Un plus haut taux de NaCl favorise un plus petit écart entre l'hygroscopicité moyenne des aérosols SHIP et NOSHIP (tableau 4.2; figure 4.11), puisque les corrélations spatio-temporelles entre le contenu en NaCl initial de NOSHIP et le changement dans l'hygroscopicité sont toutes négatives, entre -0.2 et -0.4, pour les classes de tailles 2 à 7. Ces corrélations de Pearson sont significatives à un test d'hypothèse bilatéral de Student à plus de 99%. Ces résultats indiquent que l'hygroscopicité d'une masse d'air avec une grande concentration en sel de mer sera moins affectée par les bateaux que celle d'une masse d'air continentale vierge. La capacité de nucléation d'un aérosol affecté par un bateau dépendra alors du temps de résidence en mer de la masse d'air, et de sa concentration en NaCl.

En résumé, pour ce cas d'étude, les bateaux, en plus de changer la concentration en aérosols, changent aussi leur composition en y ajoutant une quantité importante de nitrates, mais moindre en sulfates. Ils entraînent également une baisse de l'hygroscopicité, ce qui a pour effet de diminuer la capacité des aérosols à produire la nucléation des gouttelettes. L'impact des bateaux sur l'hygroscopicité est cependant fortement sensible à la composition initiale de l'aérosol, puisque dans une masse d'air avec une forte influence anthropique et une proportion en sel moindre, les bateaux augmentent la capacité des aérosols à amorcer la nucléation des gouttelettes.

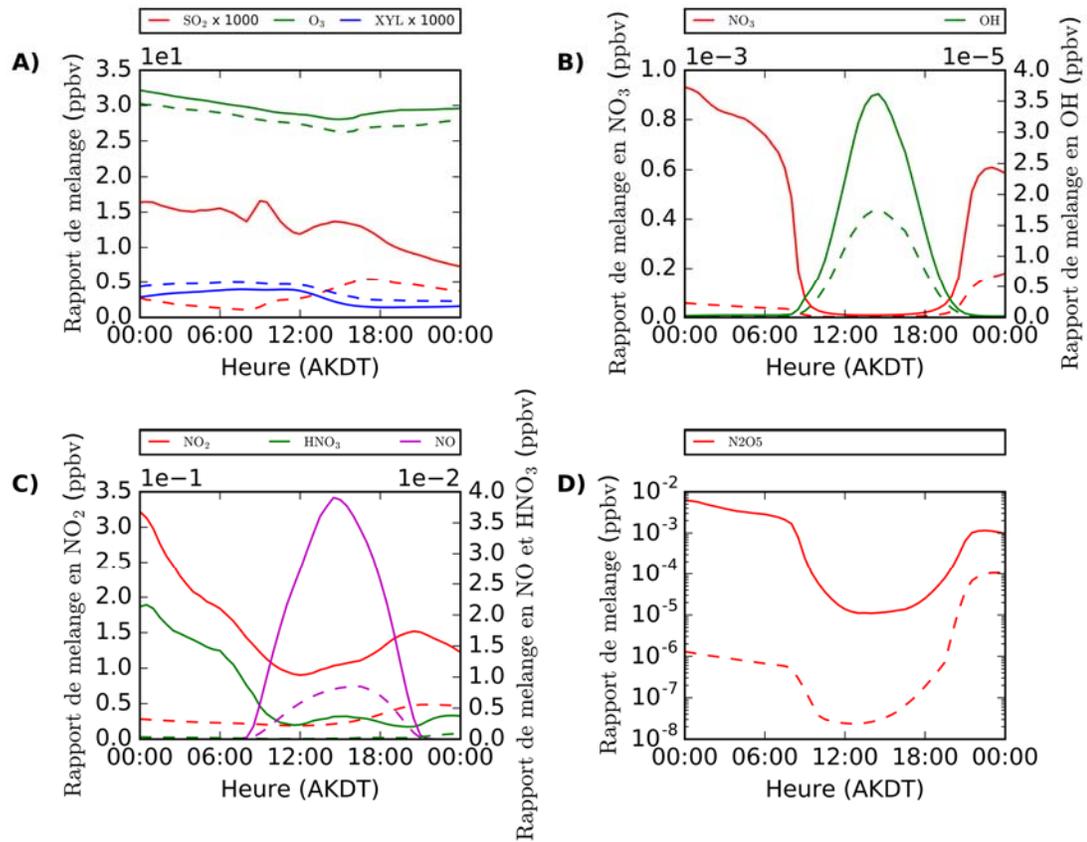


Figure 4.9 Évolution temporelle de la composition de l'air en SO₂, O₃, xylène, en radicaux OH et NO₃, en NO, NO₂, HNO₃ et pentoxyde d'azote le 29 mars 2015, moyenné dans la couche limite dans le domaine STUDY. SHIP en ligne pleine et NOSHIP en ligne pointillée.

Tableau 4.1 Corrélations (spatio-temporelle) entre le nitrate et le xylène, ainsi que le sulfate et le xylène selon SHIP et NOSHIP, dans la CLM dans le domaine STUDY, le 29 mars 2015.

	SHIP	NOSHIP
SULFATE-XYLENE	0.845	0.816
NITRATE-XYLENE	-0.2	-0.01

Tableau 4.2 Contribution massique des sels de mer face à l'interaction bateaux-hygroscopicité des aérosols selon la classe de taille (Bin) des aérosols en mode d'accumulation dans le domaine STUDY. Première ligne : fraction massique de NaCl dans un aérosol par rapport à la masse de l'aérosol. Deuxième ligne : corrélation entre le changement de l'hygroscopicité de l'aérosol entre les deux simulations et la fraction massique de NaCl.

	Bin 2	Bin 3	Bin 4	Bin 5	Bin 6	Bin 7
$\frac{\text{masse}_{\text{NaCl}}}{\text{masse}_{\text{totale}}}$ NOSHIP	0,641	0,676	0,749	0,918	0,987	0,996
CORRELATION entre ($\beta_{\text{SHIP}} - \beta_{\text{NOSHIP}}$) et $\frac{m_{\text{NaCl}}}{m_{\text{totale}}}$ NOSHIP.	-0,338	-0,508	-0,341	-0,278	-0,302	-0,293

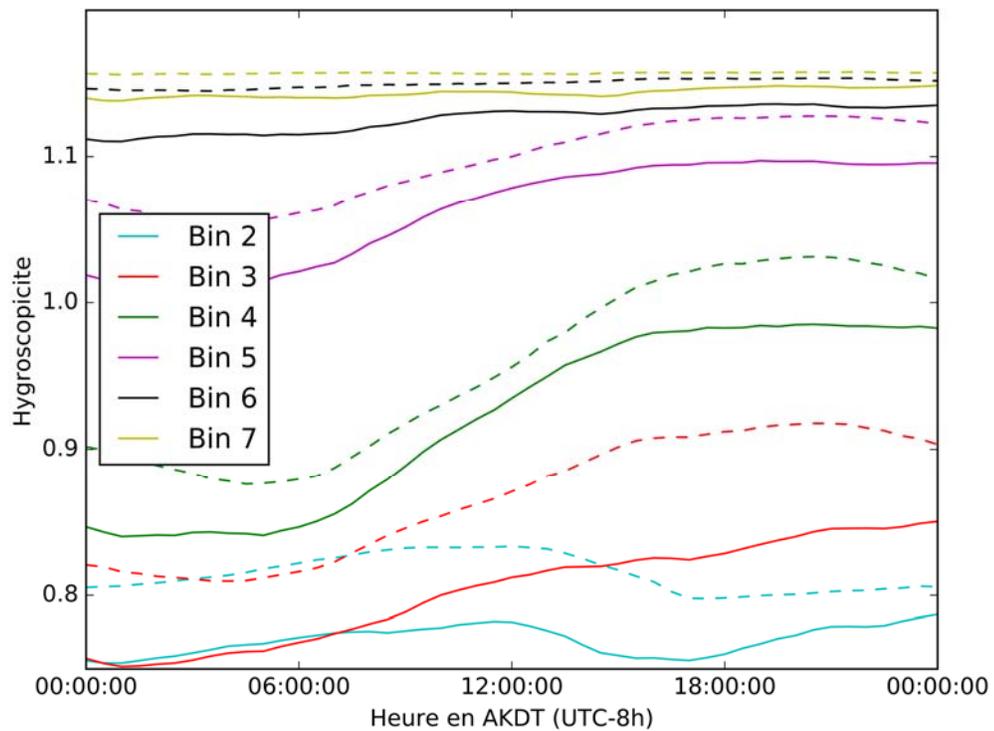


Figure 4.10 Évolution temporelle de l'hygroscopicité des aérosols selon leur classe de taille (BIN) en mode d'accumulation, moyenné dans la couche limite dans le domaine STUDY, le 29 mars 2015²³. En ligne continue, le cas SHIP et en ligne pointillée, le cas NOSHIP.

²³ Voir la section 2.4 pour le calcul de l'hygroscopicité.

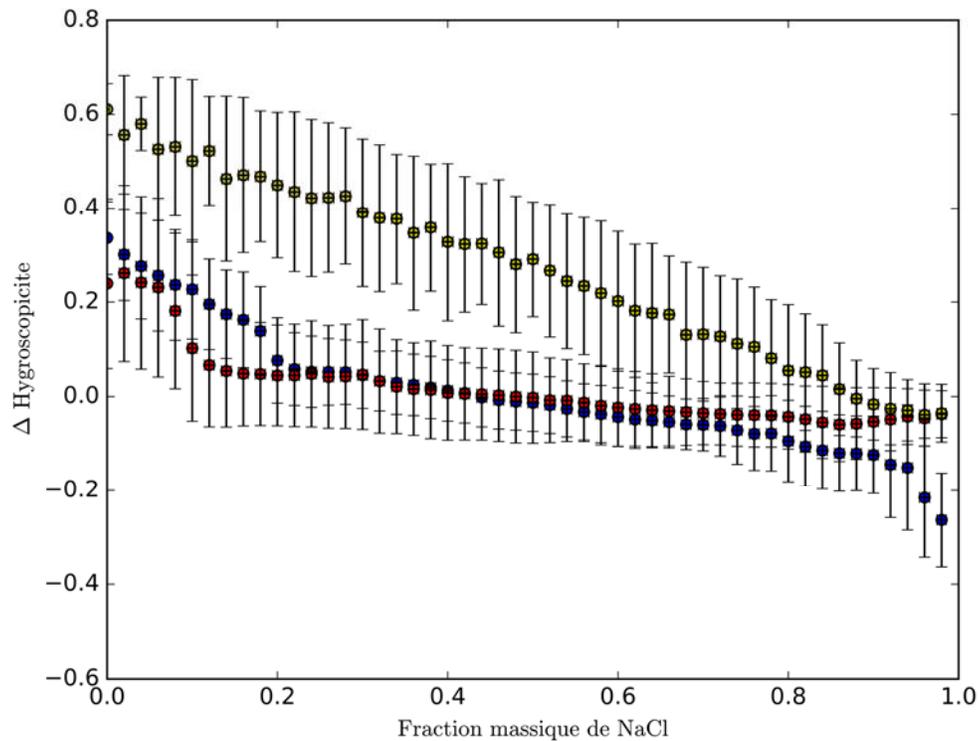


Figure 4.11 Changement moyen de l'hygroscopicité des aérosols en mode d'accumulation (SHIP-NOSHIP) selon la fraction massique en NaCl initiale (NOSHIP), dans la CLM dans le domaine STUDY. Les classes de taille 6 et 7 sont moyennées ensemble en jaune, 4 et 5 en rouge et 2 et 3 en bleu. Les barres verticales représentent la dispersion des données (± 1 écart-type) pour la fraction massique de NaCl et le changement moyen de l'hygroscopicité choisi.

CONCLUSION

Depuis plusieurs siècles, les bateaux ont contribué à l'économie mondiale en contribuant entre autres au transport des marchandises, et ce, au détriment de leur environnement, particulièrement avec l'exploitation des moteurs à combustion. Ils ont un effet négatif à la fois sur le biote marin et terrestre (Seinfeld, 1986; Endresen et al., 2003), sur la couverture des glaces lors de leur passage dans la banquise et aussi sur la composition de l'air. De multiples études ont également démontré que les bateaux à moteur à combustion ont un impact sur la couverture nuageuse (Durkee et al., 2000) ainsi que sur le bilan radiatif (Ødemark et al., 2012; Marelle et al., 2016). Ces études s'intéressaient surtout aux impacts globaux (Peter et al., 2011), polaires (Ødemark et al., 2012) ou locaux (Marelle et al., 2016). De plus, d'autres études, plus générales, ont fait état de l'injection d'aérosols anthropiques dans la couche limite marine (Wang et al., 2011), par des processus analogues aux émissions de bateaux. Cependant, la majorité de ces études ont obtenu des résultats différents en fonction de la saison, de la base de données d'émission de bateaux (de type *top-down* ou *bottom-up*), du modèle utilisé (LES, régional et global) et de la région d'étude choisie (Nordique, équatoriale et globale). Le but de notre étude était de caractériser l'impact des bateaux sur la qualité de l'air et sur la microphysique des nuages dans le golfe de l'Alaska au printemps 2015. L'hypothèse avancée était que les bateaux changent la structure microphysique des nuages et leur budget radiatif en modifiant le spectre de taille des aérosols ainsi que leur composition chimique. Cette étude, à l'échelle régionale, s'est concentrée sur le printemps au sud de l'Alaska, une région se situant près d'un corridor de trafic maritime dense. On sait que cette région est sensible au transport naval, puisque la qualité de l'air à cet endroit est grandement réduite par les émissions de dioxyde de soufre issues

des activités maritimes anthropiques (Mölders, 2010). À l'aide d'un modèle régional à haute résolution spatiale et temporelle couplé à de la chimie, de la radiation et de la microphysique des nuages, des simulations ont été réalisées. En utilisant les inventaires d'émissions biogéochimiques et anthropiques les plus précises possible, la comparaison des simulations effectuées avec et sans émissions de bateaux a démontré un impact significatif de la circulation maritime sur la microphysique des nuages, sur le bilan radiatif et sur la composition chimique de l'air et des aérosols.

Les bateaux altèrent la composition chimique de l'air en rajoutant des aérosols sous forme des particules fines, de COVs, de poussière de combustion, de BC, de sulfates et de nitrates. Sous forme de gaz, ils ajoutent également des dioxydes de soufre et des oxydes d'azotes NO_x , qui se condensent partiellement sous forme de SIA. Nos résultats ont démontré que la concentration en SO_2 et en NO_2 est grandement modulée à la suite du passage des bateaux. Nos simulations montrent que la concentration du nitrate augmente fortement dans la couche limite, alors que la concentration en sulfate augmente très peu. Par ailleurs, la concentration d'aérosols a augmenté, voir même doublé non loin du corridor naval Amérique-Asie, là où les émissions ont un taux de 10 à 100 fois plus important qu'en moyenne sur l'océan. Dans la couche limite marine, les aérosols, possédant une forte concentration en sels marins, subissent une baisse de leur hygroscopicité dans le sillage des bateaux suite à l'augmentation de sulfate et de nitrate. Les résultats des simulations ont démontré qu'alors que la concentration d'aérosols augmente substantiellement, la concentration en gouttelettes n'augmente que dans un rayon de 100 km des sources d'émission et que parfois, elle diminue. À la lumière des conclusions sur l'hygroscopicité des aérosols, il est maintenant possible d'expliquer ces résultats inattendus. Alors que la concentration d'aérosols augmente, leur hygroscopicité moyenne diminue, réduisant le taux de nucléation par rapport à l'injection d'aérosols ayant des propriétés similaires à ceux de la masse d'air maritime naturelle. La relation entre l'injection d'aérosol dans les nuages par les bateaux et le changement dans la concentration des gouttelettes n'est donc pas linéaire. Nos résultats

suggèrent qu'il faut beaucoup d'aérosols anthropiques pour avoir un changement significatif des caractéristiques microphysiques des nuages.

L'analyse a montré que l'effet des bateaux sur l'hygroscopicité des aérosols est fortement dépendant de la provenance de la masse d'air. Les masses d'air polluées par d'autres sources de combustion industrielles que les bateaux possèdent aussi une haute concentration en sulfate et une présence de traceurs anthropiques tels que le xylène. Dans le cas du 29 mars 2015, la masse d'air analysée provenait d'Alaska et avait une forte concentration en xylène et en sulfate, indiquant qu'elle était probablement contaminée par l'activité pétrolière, inhibant en partie la transformation du dioxyde de soufre naval en sulfate. Durant la deuxième moitié du mois de mars, la corrélation entre l'injection d'aérosols dans la couche limite par les bateaux et le changement des propriétés microphysiques des nuages était fortement liée à la concentration en xylène, autrement dit à la pollution anthropique de la masse d'air environnante. Ces résultats nous ont permis de conclure que les bateaux ont un effet beaucoup plus important sur les masses d'air provenant de régions vierges à faible influence anthropique, telle qu'une masse d'air purement maritime, par rapport aux masses d'air polluées tel que la côte ouest américaine, dans la mesure où le contenu en sel de mer n'est pas trop élevé dans le mode d'accumulation du spectre de taille des aérosols.

Malgré une forte concentration de NaCl et une masse d'air fréquemment polluée, nos résultats ont montré que le changement dans le spectre de taille et dans la composition des aérosols est suffisamment important pour affecter les propriétés microphysiques des nuages ainsi que le bilan radiatif de l'atmosphère. Effectivement, nous estimons que le forçage radiatif net qu'imposent les bateaux dans la région des Aléoutiennes est de l'ordre de $-1 \frac{W}{m^2}$. L'effet direct est de $+6 \frac{mW}{m^2}$ et l'effet semi-direct et indirect combiné est de $-1 \frac{W}{m^2}$. Même si les résultats semblent non statistiquement significatifs en raison de la grande variabilité des résultats, ces résultats sont compatibles avec les effets de la circulation maritime anticipés en Arctique vers 2050 selon Marelle et al. (2018). Nos

résultats ont montré que le forçage radiatif qu'appliquent les bateaux sur l'atmosphère est en grande partie liée aux changements des propriétés microphysiques des nuages et à l'augmentation de la fraction nuageuse et en moindre partie par le forçage radiatif direct des aérosols sur l'atmosphère. Notre étude n'a cependant pas pu départager l'effet indirect de l'effet semi-direct. La variabilité de l'effet des bateaux sur le bilan radiatif montre son effet sur la fraction nuageuse et dépend de plusieurs variables, dont cette étude n'a pas pu faire un état complet, principalement à cause de la résolution temporelle et spatiale limitée des modèles.

Un résultat important obtenu dans notre recherche est l'augmentation du LWP de plus de 10 % par rapport au cas de contrôle, sans bateaux. Ces résultats ont démontré que les changements du LWP sont 10% en partie attribuables à l'augmentation de la couverture nuageuse. L'injection d'aérosols dans les nuages par les bateaux et les effets indirects associés sont à 90% responsables de l'augmentation du LWP. Ce résultat est associé aux nombreux passages de dépressions pendant la saison froide boréale, saturant la CLM en nuages et inhibant ainsi l'augmentation de la fraction nuageuse. En été, lorsque la couverture nuageuse est réduite, les bateaux pourraient avoir une influence différente en créant d'avantages de *shiptrack* liés à l'injection d'aérosols dans la CLM. L'augmentation du LWP est liée à une diminution du rayon moyen des gouttes de pluie. Effectivement, alors que les émissions des bateaux réduisent faiblement le diamètre moyen des gouttelettes de nuages, les résultats montrent que l'efficacité des processus d'autoconversion et d'autocollection est réduite. Le diamètre moyen des gouttelettes de pluie diminue en moyenne de 3 μm , et une plus grande proportion de gouttelettes de pluie sont trop légères pour précipiter. Les bateaux tendent donc à supprimer la pluie au profit des gouttelettes de nuages. Cet effet favorise l'augmentation du LWP ainsi que l'albédo des nuages via l'effet Albrecht.

Les conclusions de cette recherche permettent également de comprendre comment les conditions environnementales influencent l'impact des bateaux sur l'atmosphère. La

variabilité dans les résultats peut être expliquée par la grande sensibilité de l'interaction des émissions des bateaux face aux propriétés microphysiques des nuages formés préalablement au passage de ces bateaux. Ainsi, nos résultats ont montré que les bateaux ont plus d'effets sur les nuages possédant un fort contenu en eau et en petites gouttelettes. Tel qu'expliqué précédemment, les bateaux auront aussi davantage d'influence dans une masse d'air ayant un moins grand contenu en sel et une faible influence anthropique. Les résultats apportés par cette recherche soulèvent de nombreuses questions auxquelles seuls des travaux plus avancés sauraient répondre. La variabilité spatio-temporelle importante observée dans nos simulations indique une forte sensibilité de l'atmosphère aux bateaux, autant au niveau de la microphysique qu'au niveau de la chimie atmosphérique. Les vitesses de réactions chimiques utilisées dans le modèle dépassent grandement l'échelle diurne au-delà de nos limites de calcul. Or, des facteurs horaires ont dû être appliqués, tant sur les émissions de bateaux que sur les autres émissions, anthropiques ou naturelles. Bien que la base de données d'émission de bateaux, CAMS-GOLB-SHIP était la plus précise disponible, le choix de facteurs horaires d'émission différent pourrait changer nos résultats, par exemple, en raison de la photolyse. Il serait alors important d'étudier la sensibilité de l'impact des bateaux en utilisant d'autres bases de données d'émissions de bateaux lorsque des données horaires seront disponibles. Il a été déterminé que l'effet des bateaux sur l'hygroscopicité des aérosols est sensible à la concentration du sel de mer et donc du temps que la masse d'air a passé sur l'eau. Puisque le schéma de sel de mer utilisé exagère la production de sels (Gong et al., 1997), il serait intéressant de comparer nos résultats à des simulations effectuées avec un autre schéma de sel de mer pour revoir l'effet des émissions océaniques sur l'hygroscopicité résultante des aérosols, après le passage des bateaux. Il est aussi important de poser un regard critique sur l'influence du DMS dans la couche limite, puisqu'il est possible qu'avec un taux d'émissions de DMS réduit, la production de sulfates à la suite du passage de bateaux soit supérieure, influençant ainsi davantage l'hygroscopicité des aérosols. Il est donc suggéré de refaire nos simulations sans DMS afin d'étudier son impact sur la sensibilité des bateaux et les

taux de nucléation dans les nuages. Finalement, même si la période choisie ne couvrait pas d'activité volcanique intense, et que nos données ne contenaient pas d'émissions volcaniques, il est fort probable que ces dernières interagissent avec les émissions de bateaux dans une autre période. Il est donc suggéré de refaire les expériences avec et sans émissions volcaniques dans une autre période plus active volcaniquement.

En lumière de ces conclusions, il est maintenant possible de catégoriser l'impact des bateaux sur l'atmosphère en fonction des conditions environnementales. L'influence de la température et du type d'hydrométéore n'a cependant pas été étudiée. Dans cette recherche, les conditions météorologiques environnantes dans la CLM sont demeurées fraîches avec des températures entre 0 et 10 °C et quasi saturées de vapeur d'eau en permanence. La comparaison des simulations des modèles aux observations mesurées par télédétection a montré une grande différence dans le contenu en glace au sommet des nuages en phase mixte. Puisque la majorité des précipitations sont initiées par la phase glace avant de précipiter, il serait important de mieux déterminer l'impact des bateaux sur la phase solide des nuages. Dans cette recherche, il n'y avait pas de couplage entre la chimie et les noyaux glaçogènes. Une étude plus approfondie avec un couplage glace-chimie serait donc essentielle afin d'étudier les questions soulevées dans ce mémoire. Ces simulations permettraient également de mieux catégoriser l'impact des bateaux dans les régions nordiques, là où les masses d'air ont des concentrations faibles en sels de mer, en pollution anthropique et en DMS, et par le fait même sujet à davantage d'effets sur leurs nuages liquides en milieu marin.

BIBLIOGRAPHIE

- Abdul-Razzak, H., Ghan, S. J., & Rivera-Carpio, C. (1998). A parameterization of aerosol activation: 1. Single aerosol type. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 103(D6), 6123-6131.
- Ackerman, A. S., Toon, O. B., Taylor, J. P., Johnson, D. W., Hobbs, P. V., & Ferek, R. J. (2000). Effects of aerosols on cloud albedo: Evaluation of Twomey's parameterization of cloud susceptibility using measurements of ship tracks. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 57(16), 2684-2695.
- Albrecht, B. A. (1989). Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness. *Science*, 245(4923), 1227-1230.
- Andreae, M. O. (2007). Aerosols before pollution. *Science*, 315(5808), 50-51.
- Austin, R. T., A. J. Heymsfield, and G. L. Stephens, (2009) Retrieval of ice cloud microphysical parameters using the CloudSat millimeter-wave radar and temperature, *J. Geophys. Res.*, 114, D00A23, doi:10.1029/2008JD010049.
- Balkanski, Y., Myhre, G., Gauss, M., Rädcl, G., Highwood, E. J., & Shine, K. P. (2010). Direct radiative effect of aerosols emitted by transport: from road, shipping and aviation. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(10), 4477-4489.
- Bergametti, G., Dutot, A. L., Buat-MéNard, P., Losno, R., & Remoudaki, E. (1989). Seasonal variability of the elemental composition of atmospheric aerosol particles over the northwestern Mediterranean. *Tellus B: Chemical and Physical Meteorology*, 41(3), 353-361.
- Berg, L. K., Shrivastava, M., Easter, R. C., Fast, J. D., Chapman, E. G., Liu, Y., & Ferrare, R. A. (2015). A new WRF-Chem treatment for studying regional-scale impacts of cloud processes on aerosol and trace gases in parameterized cumuli. *Geoscientific Model Development (Online)*, 8(2).
- Berner, A. H., Bretherton, C. S., Wood, R., & Muhlbauer, A. (2013). Marine boundary layer cloud regimes and POC formation in a CRM coupled to a bulk aerosol scheme. *Atmospheric Chemistry & Physics*, 13(24).

- Chapman, W. L., & Walsh, J. E. (2007). A synthesis of Antarctic temperatures. *Journal of Climate*, 20(16), 4096-4117.
- Chapman, E. G., Gustafson Jr, W. I., Easter, R. C., Barnard, J. C., Ghan, S. J., Pekour, M. S., & Fast, J. D. (2009). Coupling aerosol-cloud-radiative processes in the WRF-Chem model: Investigating the radiative impact of elevated point sources. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(3), 945-964.
- Chen, Y. C., Christensen, M. W., Xue, L., Sorooshian, A., Stephens, G. L., Rasmussen, R. M., & Seinfeld, J. H. (2012). Occurrence of lower cloud albedo in ship tracks. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(17), 8223-8235.
- Chen, Y. C., Christensen, M. W., Diner, D. J., & Garay, M. J. (2015). Aerosol-cloud interactions in ship tracks using Terra MODIS/MISR. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 120(7), 2819-2833.
- Chen, F., & Dudhia, J. (2001). Coupling an advanced land surface-hydrology model with the Penn State-NCAR MM5 modeling system. Part I: Model implementation and sensitivity. *Monthly weather review*, 129(4), 569-585.
- Christensen, M. W., Suzuki, K., Zambri, B., & Stephens, G. L. (2014). Ship track observations of a reduced shortwave aerosol indirect effect in mixed-phase clouds. *Geophysical Research Letters*, 41(19), 6970-6977.
- Coakley, J. A., Bernstein, R. L., & Durkee, P. A. (1987). Effect of ship-stack effluents on cloud reflectivity. *Science*, 237(4818), 1020-1022.
- Conover, J.H., 1966: Anomalous cloud lines. *J. Atmos. Sci.*, **23**, 778-785.
- Corbett, J. J., Lack, D. A., Winebrake, J. J., Harder, S., Silberman, J. A., & Gold, M. (2010). Arctic shipping emissions inventories and future scenarios. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(19), 9689-9704.
- Devenish, B. J., Bartello, P., Brenguier, J. L., Collins, L. R., Grabowski, W. W., IJzermans, R. H. A., ... & Warhaft, Z. (2012). Droplet growth in warm turbulent clouds. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 138(667), 1401-1429.
- Dixon, J.P., Cameron, C.E., Iezzi, A.M., and Wallace, Kristi, 2017, 2015 Volcanic activity in Alaska - Summary of events and response of the Alaska Volcano Observatory: U.S. Geological Survey Scientific Investigations Report 2017-5104, 72 p.

- Draxler, R. R., and G. D. Hess (1997), Description of the HYSPLIT_4 modeling system, *NOAA Tech. Memo. ERL ARL-224*, 24 pp., NOAA, Silver Spring, Md.
- Durkee, P. A., Noone, K. J., & Bluth, R. T. (2000). The Monterey area ship track experiment. *Journal of the atmospheric sciences*, 57(16), 2523-2541.
- Ek, M. B., Mitchell, K. E., Lin, Y., Rogers, E., Grunmann, P., Koren, V., ... & Tarpley, J. D. (2003). Implementation of Noah land surface model advances in the National Centers for Environmental Prediction operational mesoscale Eta model. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 108(D22).
- Emmons, L. K., Walters, S., Hess, P. G., Lamarque, J. F., Pfister, G. G., Fillmore, D., ... & Orlando, J. (2010). Description and evaluation of the Model for Ozone and Related chemical Tracers, version 4 (MOZART-4).
- Endresen, Ø., Sørsgård, E., Sundet, J. K., Dalsøren, S. B., Isaksen, I. S., Berglen, T. F., & Gravir, G. (2003). Emission from international sea transportation and environmental impact. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 108(D17).
- Entec, U. K. (2005). Ltd (2005). European Commission Directorate General Environment: Service contracts on ship emissions: Assignment, abatement and market-based instruments. Brussels, Entec UK Limited.
- Eyring, V., H.W. Köhler, J. Van Aardenne, and A. Lauer, 2005: Emissions from international shipping: 1. the last 50 years. *J. Geophys. Res.*, **110**, D17305, doi: 10.1029/2005JD005619.
- Fahey, K. M., & Pandis, S. N. (2001). Optimizing model performance: variable size resolution in cloud chemistry modeling. *Atmospheric Environment*, 35(26), 4471-4478.
- Ferek, R. J., Garrett, T., Hobbs, P. V., Strader, S., Johnson, D., Taylor, J. P., ... & Albrecht, B. A. (2000). Drizzle suppression in ship tracks. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 57(16), 2707-2728.
- Field, P. R., & Heymsfield, A. J. (2015). Importance of snow to global precipitation. *Geophysical Research Letters*, 42(21), 9512-9520.
- Finlayson-Pitts, B. J., & Pitts Jr, J. N. (1999). *Chemistry of the upper and lower atmosphere: theory, experiments, and applications*. Elsevier.
- Flanner, M. G. (2013). Arctic climate sensitivity to local black carbon. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 118(4), 1840-1851.

- Fletcher, N. H. (1962). Surface structure of water and ice. *Philosophical Magazine*, 7(74), 255-269.
- Gao, W., Fan, J., Easter, R. C., Yang, Q., Zhao, C., & Ghan, S. J. (2016). Coupling spectral-bin cloud microphysics with the MOSAIC aerosol model in WRF-Chem: Methodology and results for marine stratocumulus clouds. *Journal of Advances in Modeling Earth Systems*, 8(3), 1289-1309.
- Gilgen, A., Huang, W. T. K., Ickes, L., Neubauer, D., & Lohmann, U. (2018). How important are future marine and shipping aerosol emissions in a warming Arctic summer and autumn?. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(14), 10521-10555.
- Gong, S. L., Barrie, L. A., & Blanchet, J. P. (1997). Modeling sea-salt aerosols in the atmosphere: 1. Model development. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 102(D3), 3805-3818.
- Gong, S. L., Barrie, L. A., Prospero, J. M., Savoie, D. L., Ayers, G. P., Blanchet, J. P., & Spacek, L. (1997). Modeling sea-salt aerosols in the atmosphere: 2. Atmospheric concentrations and fluxes. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 102(D3), 3819-3830.
- Granier, C., S. Darras, H. Denier van der Gon, J. Doubalova, N. Elguindi, B. Galle, M. Gauss, M. Guevara, J.-P. Jalkanen, J. Kuenen, C. Liousse, B. Quack, D. Simpson, K. Sindelarova The Copernicus Atmosphere Monitoring Service global and regional emissions (April 2019 version) Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) report April 2019 version, 54 pp, doi:10.24380/d0bn-kx16, 2019
- Grell, G. A., Peckham, S. E., Schmitz, R., McKeen, S. A., Frost, G., Skamarock, W. C., & Eder, B. (2005). Fully coupled “online” chemistry within the WRF model. *Atmospheric Environment*, 39(37), 6957-6975.
- Gumley, L., Descloitres, J., & Schmaltz, J. (2003). Creating reprojected true color MODIS images: A tutorial. University of Wisconsin–Madison, 19.
- Hansen, J., Ruedy, R., Sato, M., & Lo, K. (2010). Global surface temperature change. *Reviews of Geophysics*, 48(4).
- Haywood, J., & Boucher, O. (2000). Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: A review. *Reviews of geophysics*, 38(4), 513-543.

- Heintzenberg, J., Covert, D. C., & Dingenen, R. V. (2000). Size distribution and chemical composition of marine aerosols: a compilation and review. *Tellus B: Chemical and Physical Meteorology*, 52(4), 1104-1122.
- Iacono, M.J., J.S. Delamere, E.J. Mlawer, M.W. Shephard, S.A. Clough, and W.D. Collins, Radiative forcing by long-lived greenhouse gases: Calculations with the AER radiative transfer models, *J. Geophys. Res.*, **113**, D13103, doi:10.1029/2008JD009944, 2008.
- Janjić, Z. I. (1994). The step-mountain eta coordinate model: Further developments of the convection, viscous sublayer, and turbulence closure schemes. *Monthly weather review*, 122(5), 927-945.
- Janssens-Maenhout, G., Crippa, M., Guizzardi, D., Dentener, F., Muntean, M., Pouliot, G., ... & Denier van der Gon, H. (2015). HTAP_v2. 2: a mosaic of regional and global emission grid maps for 2008 and 2010 to study hemispheric transport of air pollution. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(19), 11411-11432.
- J-P. Jalkanen, L. Johansson, and J. Kukkonen, A comprehensive inventory of ship traffic exhaust emissions in the European sea areas in 2011 *Atmos. Chem. Phys.* null, 7459-7491, No editor, 2015
- Johansson, L., Jalkanen, J. P., & Kukkonen, J. (2017). Global assessment of shipping emissions in 2015 on a high spatial and temporal resolution. *Atmospheric Environment*, 167, 403-415.
- Johnson, B. T., Shine, K. P., & Forster, P. M. (2004). The semi-direct aerosol effect: Impact of absorbing aerosols on marine stratocumulus. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 130(599), 1407-1422.
- Intrieri, J. M., Fairall, C. W., Shupe, M. D., Persson, P. O. G., Andreas, E. L., Guest, P. S., & Moritz, R. E. (2002). An annual cycle of Arctic surface cloud forcing at SHEBA. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 107(C10), SHE-13.
- Kirtman, B., Power, S. B., Adedoyin, A. J., Boer, G. J., Bojariu, R., Camilloni, I., ... & Prather, M. (2013). Near-term climate change: projections and predictability.
- Korolev, A. V., & Mazin, I. P. (2003). Supersaturation of water vapor in clouds. *Journal of the atmospheric sciences*, 60(24), 2957-2974.
- Kwok, R. & Untersteiner, N. *New high-resolution images of summer sea ice. Physics Today* **64**, 36–41 (April, 2011).

- Lana, A., Simó, R., Vallina, S. M., & Dachs, J. (2012). Re-examination of global emerging patterns of ocean DMS concentration. *Biogeochemistry*, 110(1-3), 173-182.
- Laprise, R. (1992). The Euler equations of motion with hydrostatic pressure as an independent variable. *Monthly weather review*, 120(1), 197-207.
- Marelle, L., Thomas, J. L., Raut, J. C., Law, K. S., Jalkanen, J. P., Johansson, L., ... & Weinzierl, B. (2016). Air quality and radiative impacts of Arctic shipping emissions in the summertime in northern Norway: from the local to the regional scale. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(4), 2359-2379.
- Marelle, L., Raut, J. C., Law, K. S., Berg, L. K., Fast, J. D., Easter, R. C., ... & Thomas, J. L. (2017). Improvements to the WRF-Chem 3.5.1 model for quasi-hemispheric simulations of aerosols and ozone in the Arctic. *Geoscientific Model Development*, 10(10), 3661-3677.
- Marelle, L., Raut, J. C., Law, K. S., & Duclaux, O. (2018). Current and Future Arctic Aerosols and Ozone From Remote Emissions and Emerging Local Sources—Modeled Source Contributions and Radiative Effects. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 123(22), 12-942.
- Meyers, M. P., Walko, R. L., Harrington, J. Y., & Cotton, W. R. (1997). New RAMS cloud microphysics parameterization. Part II: The two-moment scheme. *Atmospheric Research*, 45(1), 3-39.
- Miles, N. L., Verlinde, J., & Clothiaux, E. E. (2000). Cloud droplet size distributions in low-level stratiform clouds. *Journal of the atmospheric sciences*, 57(2), 295-311.
- Millet, D. B., Goldstein, A. H., Allan, J. D., Bates, T. S., Boudries, H., Bower, K. N., ... & Sullivan, A. (2004). Volatile organic compound measurements at Trinidad Head, California, during ITCT 2K2: Analysis of sources, atmospheric composition, and aerosol residence times. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 109(D23).
- Miola, A., & Ciuffo, B. (2011). Estimating air emissions from ships: Meta-analysis of modelling approaches and available data sources. *Atmospheric environment*, 45(13), 2242-2251.
- Mircea, M., Stefan, S., & Fuzzi, S. (2000). Precipitation scavenging coefficient: influence of measured aerosol and raindrop size distributions. *Atmospheric Environment*, 34(29-30), 5169-5174.

- Mölders, N., Porter, S. E., Cahill, C. F., & Grell, G. A. (2010). Influence of ship emissions on air quality and input of contaminants in southern Alaska National Parks and Wilderness Areas during the 2006 tourist season. *Atmospheric Environment*, 44(11), 1400-1413.
- Morrison, H. C. J. A., Curry, J. A., & Khvorostyanov, V. I. (2005). A new double-moment microphysics parameterization for application in cloud and climate models. Part I: Description. *Journal of the atmospheric sciences*, 62(6), 1665-1677.
- Mesquita, M. S., Atkinson, D. E., & Hodges, K. I. (2010). Characteristics and variability of storm tracks in the North Pacific, Bering Sea, and Alaska. *Journal of Climate*, 23(2), 294-311.
- Mülmenstädt, J., Sourdeval, O., Delanoë, J., & Quaas, J. (2015). Frequency of occurrence of rain from liquid-, mixed-, and ice-phase clouds derived from A-Train satellite retrievals. *Geophysical Research Letters*, 42(15), 6502-6509.
- Nightingale, P. D., Malin, G., Law, C. S., Watson, A. J., Liss, P. S., Liddicoat, M. I., ... & Upstill-Goddard, R. C. (2000). In situ evaluation of air-sea gas exchange parameterizations using novel conservative and volatile tracers. *Global Biogeochemical Cycles*, 14(1), 373-387.
- NSIDC: National Snow and Ice Data Center, Arctic sea ice shatters all previous record lows, *Arctic Sea Ice News* Fall 2007, 2007.
- Ødemark, K., Dalsøren, S. B., Samset, B. H., Berntsen, T. K., Fuglestad, J. S., & Myhre, G. (2012). Short-lived climate forcers from current shipping and petroleum activities in the Arctic. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(4), 1979-1993.
- Ooyama, K. V. (1990). A thermodynamic foundation for modeling the moist atmosphere. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 47(21), 2580-2593.
- Peters, K., Quaas, J., & Graßl, H. (2011). A search for large-scale effects of ship emissions on clouds and radiation in satellite data. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 116(D24).
- Peters, K., Quaas, J., & Graßl, H. (2011). A search for large-scale effects of ship emissions on clouds and radiation in satellite data. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 116(D24).
- Porter, S. E. (2009). Investigation of the impact of ship emissions on atmospheric composition and deposition into remote, coastal landscapes of Southwest Alaska (Doctoral dissertation, University of Alaska Fairbanks).

- Possner, A., Zubler, E., Lohmann, U., & Schär, C. (2015). Real-case simulations of aerosol–cloud interactions in ship tracks over the Bay of Biscay. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(4), 2185-2201.
- Prenni, A. et al. Can ice-nucleating aerosols affect Arctic seasonal climate?. *Bull. Am. Meteorol. Soc.* 88, 541–550 (2007).
- Pruppacher, H. R., & Klett, J. D. (1997). *Microphysics of clouds and precipitation*, Atmos. Oceanogr. Sci. Libr, 18.
- Seinfeld, J.H. and S.N. Pandis: *Atmospheric Chemistry and Physics: from Air Pollution to Climate Change*, sd edition, 1225 pp., John Wiley & Sons, Inc., Hoboken, New Jersey, 2006.
- Sessions, W. R., Fuelberg, H. E., Kahn, R. A., & Winker, D. M. (2011). An investigation of methods for injecting emissions from boreal wildfires using WRF-Chem during ARCTAS. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(12), 5719-5744.
- Shupe, M. & Intrieri, J. Cloud radiative forcing of the Arctic surface: The influence of cloud properties, surface albedo, and solar zenith angle. *J. Climate* 17, 616–628 (2004).
- Shupe, M. Clouds at Arctic atmospheric observatories. Part 2: Thermodynamic phase characteristics. *J. Appl. Meteorol.* 50, 645–661 (2011).
- Skamarock, W. C., & Klemp, J. B. (1992). The stability of time-split numerical methods for the hydrostatic and the nonhydrostatic elastic equations. *Monthly Weather Review*, 120(9), 2109-2127.
- Skamarock, W. C., Klemp, J. B., Dudhia, J., Gill, D. O., Barker, D. M., Wang, W., & Powers, J. G. (2005). A description of the advanced research WRF version 2 (No. NCAR/TN-468+ STR). National Center For Atmospheric Research Boulder Co Mesoscale and Microscale Meteorology Div.
- Skamarock, W. C., & Klemp, J. B. (2008). A time-split nonhydrostatic atmospheric model for weather research and forecasting applications. *Journal of computational physics*, 227(7), 3465-3485.
- Skjølsvik, K. O., Andersen, A. B., Corbett, J. J., & Skjelvik, J. M. (2000). Study on greenhouse gas emissions from ships. MT Rep. Mtoo A23-038. Trondheim, Norway: MARINTEK.

- Terai, C. R., Bretherton, C. S., Wood, R., & Painter, G. (2014). Aircraft observations of aerosol, cloud, precipitation, and boundary layer properties in pockets of open cells over the southeast Pacific. *Atmospheric Chemistry & Physics*, 14(15).
- Tessum, C. W., Hill, J. D., & Marshall, J. D. (2015). Twelve-month, 12km resolution North American WRF-Chem v3. 4 air quality simulation: performance evaluation. *Geoscientific Model Development*, 8(4).
- Tuccella, P., Thomas, J., Law, K. S., Raut, J. C., Marelle, L., Roiger, A., ... & Onishi, T. (2017). Air pollution impacts due to petroleum extraction in the Norwegian Sea during the ACCESS aircraft campaign. *Elementa: Science of the Anthropocene*, 5, 25.
- Twomey, S. (1959). The nuclei of natural cloud formation part II: The supersaturation in natural clouds and the variation of cloud droplet concentration. *Geofisica pura e applicata*, 43(1), 243-249.
- Twomey, S. (1977). The influence of pollution on the shortwave albedo of clouds. *Journal of the atmospheric sciences*, 34(7), 1149-1152.
- Vutukuru, S., & Dabdub, D. (2008). Modeling the effects of ship emissions on coastal air quality: A case study of southern California. *Atmospheric Environment*, 42(16), 3751-3764.
- Wang, H., Rasch, P. J., & Feingold, G. (2011). Manipulating marine stratocumulus cloud amount and albedo: a process-modelling study of aerosol-cloud-precipitation interactions in response to injection of cloud condensation nuclei. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(9), 4237-4249.
- Westbrook, C. D., & Illingworth, A. J. (2011). Evidence that ice forms primarily in supercooled liquid clouds at temperatures $> -27^{\circ}$ C. *Geophysical research letters*, 38(14).
- Wexler, A. S., Lurmann, F. W., & Seinfeld, J. H. (1994). Modelling urban and regional aerosols—I. Model development. *Atmospheric Environment*, 28(3), 531-546.
- Wiedinmyer, C., Akagi, S. K., Yokelson, R. J., Emmons, L. K., Al-Saadi, J. A., Orlando, J. J., & Soja, A. J. (2011). The Fire INventory from NCAR (FINN): A high resolution global model to estimate the emissions from open burning. *Geoscientific Model Development*, 4(3), 625.

Whitby, K. T. (1978). The physical characteristics of sulfur aerosols. In *Sulfur in the Atmosphere* (pp. 135-159). Pergamon.

Zaveri, R. A., & Peters, L. K. (1999). A new lumped structure photochemical mechanism for large-scale applications. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 104(D23), 30387-30415.

Zaveri, R. A., Easter, R. C., Fast, J. D., and Peters, L. K., Model for Simulating Aerosol Interactions and Chemistry (MOSAIC), *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 113(D13), doi: 10. 1029/2007JD008782, URL <http://dx.doi.org/10.1029/2007JD008782>, d13204, 2008.

Nous remercions Michael Wheeler et Environnement et Changement Climatique Canada pour l'obtention des données sur la qualité de l'air à Whistler, Colombie-Britannique, Canada. (<https://www.canada.ca/en/environnement-climate-change/>).

Nous remercions le groupe des sciences de l'atmosphère de l'Université du Québec à Montréal pour l'utilisation des cartes synoptiques du site web <http://meteocentre.com/>.

We acknowledge the use of imagery from the NASA Worldview application (<https://worldview.earthdata.nasa.gov/>), part of the NASA Earth Observing System Data and Information System (EOSDIS).

We acknowledge the use of the upper air data archived by the university of Wyoming (<http://weather.uwyo.edu/wyoming>).

We acknowledge the use of the ECCAD products CAMS-GLOB-SHIP for the archiving and distribution of the data (<https://permalink.aeris-data.fr/CAMS-GLOB-SHIP>).