## UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À MONTRÉAL

# ÉTUDE DES INTERACTIONS ENTRE LES AÉROSOLS, LES NUAGES ET LA RADIATION AVEC LE MODÈLE WRF-CHEM COUPLÉ À UNE MICROPHYSIQUE AVANCÉE POUR LA FORMATION DES NUAGES GLACÉS EN ARCTIQUE

THÈSE

## PRÉSENTÉE

## COMME EXIGENCE PARTIELLE

## DU DOCTORAT EN SCIENCES DE LA TERRE ET DE L'ATMOSPHÈRE

## PAR SETIGUI ABOUBACAR KEITA

Novembre 2022

## UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À MONTRÉAL Service des bibliothèques

### Avertissement

La diffusion de cette thèse 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.04-2020). 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.»

This thesis is dedicated to Eric Girard who died July 10, 2018. Eric contributed greatly to the field of Arctic cloud and aerosol microphysics during his research career...

## REMERCIEMENTS

C'est avec une très grande émotion que j'écris les dernières lignes de cette thèse. Je tiens du plus profond de mon cœur à remercier mon ancien directeur de thèse Éric Girard qui nous a malheureusement quitté quelques temps avant la fin de cette thèse. J'ai toujours été fasciné par ta modestie, ton esprit critique ainsi que ta capacité à trouver des solutions à des problèmes scientifiques complexes. Merci pour ta confiance, ton humour et ces moments anecdotiques. Merci de m'avoir inculqué le gout de la recherche scientifique! Ce n'est qu'un au revoir!

J'aimerai remercier chaleureusement mon directeur de thèse Jean-Pierre Blanchet qui a pris le relai sans hésitation et s'est imprégné rapidement du projet de thèse. Je te remercie pour ta rigueur exemplaire et d'avoir partagé avec moi ton enthousiasme et tes connaissances. Tes relectures méticuleuses m'ont sans aucun doute permis de préciser mes propos.

Je voudrais remercier mon co-encadrant, Jean-Christophe Raut présent au tout début de cette aventure. Par tes connaissances diverses et poussées dans le domaine, tu m'as permis de me dépasser, au-delà de mes espérances. Ton style d'encadrement était en adéquation avec mes aspirations. Tu m'as rendu plus autonome tout au long de ce travail de recherche.

Un remerciement chaleureux à Maud Leriche ma co-encadrante non officielle pour des raisons administratives. Elle a pris une part active dans cette thèse et m'a permis d'approfondir plusieurs aspects de ce projet. Merci pour ta disponibilité et ta patience.

Je remercie également Jacques Pelon, un fin analyste et important conseiller durant ce projet de par son expérience. J'en profite pour remercier toute l'équipe du LATMOS à Paris pour votre accueil chaleureux durant mes mois de recherche. Ce fut une expérience très enrichissante!

Je souligne aussi l'apport du département des sciences de la terre et de l'atmosphère de l'UQAM, à travers mes collègues, ami(e)s, professeurs et personnels de soutien qui ont apportés une touche unique et inoubliable à l'expérience. Je remercie France Beauchemin et Katja Winger pour leur support tout au long de la thèse. Je tiens à remercier particulièrement René Laprise pour sa sagesse et son aide inconditionnelle tout au long du projet et plus particulièrement durant la transition vers un nouveau directeur. Tu as toujours cru en moi!

Mes remerciements s'adressent aussi à mes collègues d'Environnement et Changement Climatique Canada pour leur précieux conseils scientifiques et leur motivation qui m'ont beaucoup aidés pendant ce doctorat.

Ma fille, ma joie de vivre, née au milieu de ce projet, je te remercie de faire partie de ma vie. Je n'oublierais jamais les câlins que tu me faisais durant mes soirées de travail lorsque tu sentais la fatigue de papa. Merci de m'avoir donnée la force de finir ce projet. Je souhaite également la bienvenue à mon fils arrivée dans nos vies au moment où j'écrivais les dernières lignes de ce projet. Ton papa t'aime t'en!

Un merci sans équivoque à mon épouse, ma compagne, de m'avoir épaulé inconditionnellement durant ce long parcours. Merci pour ton enthousiasme contagieux à l'égard de mes travaux.

Ces remerciements ne peuvent s'achever, sans une pensée pour ma mère, ma sœur, mon père et mes frères avec cette question récurrente, « quand est-ce que tu soutiens cette thèse ? ». Bien que cela soit une question angoissante en période de doutes, ils m'ont permis de ne jamais dévier de mon objectif final. Merci pour votre amour, votre soutien, votre générosité tout au long de ma vie...

# TABLE DES MATIÈRES

CHAPITRE I : NUAGES ARCTIQUES : INTÉRÊT SCIENTIFIQUE	1
1.1. Introduction	1
1.2. La région arctique	2
1.3. L'importance des nuages arctiques	5
1.4. Les processus de formation des nuages de glace	7
1.4.1. La nucléation par déposition	9
1.4.2. Le gel par contact	10
1.4.3. La congélation par immersion	10
1.4.4. La congélation par condensation	11
1.5. Les interactions aérosols-nuages en Arctique	11
1.6. La modélisation des nuages de glace en Arctique	14
CHAPITRE II : DESCRIPTION GÉNÉRALE DES DONNÉES ET DES MÉT UTILISÉES	ГНОDES 21
2.1. Le modèle WRF (Weather Research and Forecasting) et sa version avec la chimie Chem 21	e WRF-
2.1.1. Le modèle WRF	21
2.1.2. Le modèle WRF-Chem	24
2.2. Les données de référence	25
2.2.1. Les relevés in-situ de la campagne de mesure ISDAC	26
2.2.2. Les données satellitaires DARDAR	28

# CHAPITRE III : SIMULATING ARCTIC ICE CLOUDS DURING SPRING USING AN ADVANCED ICE-CLOUD MICROPHYSICS IN THE WRF MODEL 30 3.1. Introduction 32 3.2. WRF 36

3.2.1.	Model Description and Set-up	
3.2.2.	Modification of the Microphysical Scheme	
3.2.3.	Simulation Description	
3.3. Obs	servation data	
3.3.1.	ISDAC campaign	
3.3.2.	DARDAR Satellite Products	
3.4. Res	sults and Discussion	
3.4.1. M	eteorological Profiles	
3.4.2.	Spatial Structure of IWC in Large Scale Clouds	
3.4.3.	IWC Profiles Along Flight Tracks	
3.4.4.	Microphysical Parameters of Ice Clouds	
3.4.4.	1. Clean Air Masses	
3.4.4.2	2. Polluted Air Masses	
3.5. Sur	nmary and conclusions	

## 

4.1.	Introduction	1
4.2.	Description of the new scheme for ice heterogeneous nucleation in WRF-Chem 84	4
4.2.	1Overview of the two-moment version of the cloud microphysical scheme MY05	5 4
4.2.2 for 1	2. A new parameterization of ice heterogeneous nucleation coupled with chemis MY05 in WRF-Chem	stry 0
4.3. ISDAC	Configuration of the model for typical TIC1 and TIC2 clouds observed during the C campaign	6
4.4.	Results and discussion 100	0
4.4.	1. Temperature and relative humidity over ice	1

4.4.2	2. Aerosol properties	103
4.4.3	Cloud microphysical structure	110
4.4.4	Discussion	
4.5.	Conclusion	116
CHAPITE	RE V : DISCUSSION SUR L'ANALYSE STATISTIQUE	120
CHAPITE	RE VI : CONCLUSION ET PERSPECTIVES	123
6.1.	Conclusion	
6.2.	Perspectives : étude climatique des TICs en Arctique	
ANNEXE	E A	131
ANNEXE	B	142
		155
DIDLIUU	ΙΚΑΓΠΙΕ	155

## LISTE DES FIGURES

Figure 1.1 : Cette carte montre trois définitions de l'Arctique : la limite des arbres, l'isotherme de 10 degrés Celsius en juillet à la surface et le cercle arctique à 66° 34' nord. Crédit: National Snow and Ice Data Center (NSIDC)......4

Figure 1.2 : Les différentes types de nucléation primaire dans l'atmosphère (Kanji et al. 2017).

- Figure 1.3 : Concentration en nombre de cristaux de glace d'un TIC-2 observée (ligne pleine rouge) et simulée(ligne pleine bleu) par le modèle GEM-LAM. L'écart entre les courbes en pointillé correspondent aux incertitudes (2σ) sur la mesure. Le schéma microphysique utilisé est celui à deux moments de Milbrant and Yau (2005)......17
- Figure 3.1: Upper panel: Model domain (yellow contour) used in this study centered over Fairbanks with a horizontal resolution of 10 km. The blue, red, green and magenta lines represent CloudSat-CALIPSO T12, T13, T21 and T29 tracks, respectively. The orange circles represent the different ISDAC flights: F12, F13, F21 over Barrow and F29 over Fairbanks. An observation box (red rectangle) between (65°N, 142°W) and (72°N, 162°W) has been defined to identify the area where all flights have been performed. Lower panel: Lidar cross-section from CALIPSO orbit (white dash-dot line in upper panel) taken about 12 h prior to F21 ISDAC flight showing several volcanic plumes and formation of thin ice cloud (TIC-2) directly on the aerosol plumes in the ISDAC campaign region.

- Figure 3.6: Observed DARDAR and simulated cross section of the ice water content IWC from WRF, WRF\_np, WRF\_p simulations along T21 (A) and T29 (B) tracks. The red rectangles correspond to the whole area where the flights have been performed (Figure 3.1).

- Figure 3.10: Observed and simulated (WRF, WRF\_np and WRF\_p) Ri along T12 track (A) and F12 flight (B). Simulated profile WRF\_np\_mean averaged along the satellite track over the larger domain of Figure 1 is also shown on (B) together with DARDAR-retrieved average profile. The dashed red line on (B) represents the variability (standard deviation) of ISDAC observations. Note that no clouds observed between 650 hPa and 700 hPa.

- Figure 3.13: Observed and simulated (WRF, WRF\_np and WRF\_p) Ni along T29 track (A) and F29 flight (B). Simulated profile WRF\_p\_mean averaged along the satellite track over the

Figure 4.1 : Variation of  $f_n$  with  $\theta$  for MYKE2 (blue line) and MYKE4 (green line) 96

- Figure 4.4 : Vertical profiles of sulfate (A), ammonium (B) and nitrate (C) molar aerosol concentration along flights F13 (green), F21 (red) and F29 (light blue).....107

## LISTE DES TABLEAUX

- Table 3.2: Ice nucleation parameterization schemes used for the simulations. The original microphysical scheme (WRF) is based on the singular hypothesis (the singular approach assumes nucleation to occur at specific relative humidity and temperature (Murray et al. 2012; Wheeler et Bertram 2012)), while WRF\_np and WRF\_p are based on the stochastic theory, which includes a contact angle ( $\theta$ =12° and  $\theta$ =26°, respectively)......40

 Table 4.1 : Bulk density for each hydrometeor category
 86

- Table A.1 Root mean square errors (RMSE), Relative error (RE), bias (Bias) and correlation coefficients (Cor) for the temperature (T), relative humidity over ice (RH<sub>i</sub>), Ice Water Content (IWC), Ice number concentration (Ni) and Ice crystals mean radius (Ri) for the three simulations (WRF, WRF\_np and WRF\_p). Related to Chapter III....134

# LISTE DES ABRÉVIATIONS, SIGLES ET ACRONYMES

3D	3 dimensions	
ARCTAS	Arctic Research of the Composition of the Troposphere from	
	Aircraft and Satellites	
ASC	Agence Spatial Canadienne	
ARW	Advanced Research WRF	
A-Train	Afternoon Train	
CCN	Cloud Condensation Nuclei	
CALIOP	Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization	
CALIPSO	Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite	
	Observation	
CNT	Classical Nucleation Theory	
DES	la rétroaction déshydratation-effet de serre	
DOE-ARM	Department Of Energy- Atmospheric Radiation Measurement	
INPs	Ice Nuclei Particles	
IPSL	Institut Pierre-Simon Laplace	
IR	Infrared	
ISDAC	Indirect and Semi-Direct Aerosol Campaign	
IWC	Ice Water Content	
IWP	Ice Water Path	
MYKE	Milbrandt, Yau and KEita	
LWP	Liquid Water Path	
NMM	Nonhydrostatic Mesoscale Model	
MSLP	Mean Sea Level Pressure	
NCAR	National Center for Atmospheric Research	
NCEP	National Centers for Environmental Prediction	
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration	
NSA	North Slope of Alaska	
NSIDC	National Snow and Ice Data Center	
PBL	Planetary Boundary Layer	
REF	REFerence	
RMSE	Root Mean Square Error	
SIFI	Sulphate-Induced Freezing Inhibition	
SLCFs	Short-Lived Climate Forcers	
SST	Sea Surface Temperature	
SHEBA	Surface Heat Budget of the Arctic Ocean	
TIC	Type of Ice Clouds	
ТОА	Top of the Atmosphere	
WRF	Weather Research and Forecasting	
WRF-Chem	Weather Research and Forecasting including Chemistry	

# LISTE DES SYMBOLES

Symbole	Nom	Unités
$\theta$	Angle de contact	0
$\Delta t$	Pas de temps	S
$N_f$	Fraction de INPs nucléée	-
$\overline{N_0}$		
A <sub>d</sub>	Surface area of dust particles	m <sup>2</sup>
В	Pre-exponential factor	$cm^{-2} s^{-1}$
C <sub>i</sub>	Mass parameter for ice	$\log m^{-3}$
CO <sub>2</sub>	Dioxyde de carbone	-
$C_{\chi}$	Mass parameter for <i>x</i>	$kg m^{-3}$
D	Diameter of a particle	m
$f_n$	Neutralization fraction	-
F <sub>freeze</sub>	Fraction of cloud droplets that freeze in $\Delta t$	-
J	Nucleation rate for pure water for homogeneous nucleation	$cm^{-2} s^{-1}$
J <sub>d</sub>	Nucleation rate for heterogenous ice nucleation	$cm^{-2} s^{-1}$
k	Boltzmann constant	$m^2 kg s^{-2} K^{-1}$
$m_{\chi}(D)$	Mass of a particle with diameter <i>D</i>	Kg
Na	total aerosol number concentration	$m^{-3}$
N <sub>0</sub>	Total number concentration of available INP	$m^{-3}$
N <sub>0x</sub>	Intercept parameter for category <i>x</i>	$m^{-(4+\alpha x)}$
Ni	Concentration en nombre des cristaux de glace	$m^{-3}$
N <sub>f</sub>	Number concentration of nucleated ice crystals	$m^{-3}$
N <sub>m,i</sub>	Number of ice crystals predicted due to deposition and condensation- freezing	$m^{-3}$
N <sub>T,i</sub>	Total ice concentration number concentration	$m^{-3}$
N <sub>Tx</sub>	Total ice number concentration of category $x$	<i>m</i> <sup>-3</sup>
$N_x(D)$	Size distribution function of category <i>x</i>	$m^{-4}$

$q_{T,i}$	Total ice mass mixing ratio	$kg \ kg^{-1}$
$q_x$	Mixing ratio of category <i>x</i>	$kg kg^{-1}$
U	Three-dimensional velocity vector	m s <sup>-1</sup>
V	Droplet volume	m <sup>3</sup>
$V_{Qx}, V_{Nx}$	Mass- and number-weighted fall speeds of category <i>x</i> , respectively	$m s^{-1}$
$r_g$	Critical germ size	cm
Re	Rayon effectif des cristaux de glace	m
RH <sub>i</sub>	<i>Humidité relative par rapport à la glace</i>	%
R <sub>i</sub>	Rayon moyen des cristaux de glace	<i>m</i>
$r_n$	Aerosol particle (nucleus) mean radius	m
Rv	Gas constant for water vapor	$J kg^{-1}K^{-1}$
S <sub>ice</sub>	<i>Rapport de saturation par rapport à la glace</i>	-
S <sub>i</sub>	Saturation over ice	-
Т	Temperature of air in Celsius	°C
Ζ	Height	m
ρ	Density of air	$\mathrm{kg}m^{-3}$
$ ho_x$	Bulk density of category <i>x</i>	$\mathrm{kg}m^{-3}$
$\alpha_c$	Shape parameter for cloud	-
$\alpha_i$	Shape parameter for ice	-
$\alpha_x$	Shape parameter for category $x \in (r, i, s, h, g)$	-
$\lambda_c$	Slope parameter for cloud	-
$\lambda_i$	Slope parameter for ice	-
$\lambda_x$	Slope parameter for category <i>x</i>	-
$\sigma_{i\nu}$	Surface tension between ice and water	J m <sup>-2</sup>
$\nu_{\chi}$	Dispersion parameter for category $x$	-
$\Gamma(x)$	Complete gamma function	-
$\Delta G$	Critical Gibbs free energy	J

# RÉSUMÉ

Le lancement des satellites CloudSat et CALIPSO dans le cadre de la mission A-Train ainsi que la campagne ISDAC (Indirect and Semi-Direct Aerosols Campaign) de mesures in-situ ont permis à Grenier et al. (2009) et Jouan et al. (2012) de caractériser deux types de nuages de glace (TIC pour Types of Ice Clouds) en Arctique qui diffèrent par leur microstructure. Les TIC-1 sont constitués de nombreux petits cristaux de glace en suspension dans l'air, visibles par le lidar mais invisibles au radar, alors que les TIC-2 sont détectés par le lidar et le radar et sont caractérisés par une faible concentration en gros cristaux de glace donnant lieu à des précipitations. Les travaux précités ont permis d'établir une corrélation entre les concentrations d'acide sulfurique et la présence des TIC-2. L'hypothèse formulée à la suite de ces travaux est que la formation des TIC-2 est liée à l'acidification des aérosols, qui inhibe et affecte les propriétés de nucléation hétérogène de la glace de ces noyaux glaçogènes (INPs pour Ice Nuclei Particles). En conséquence, la concentration en INPs est réduite dans les masses d'air riches en sulfates, ce qui entraîne une plus faible concentration de cristaux de glace. Pour une quantité de vapeur d'eau donnée, les cristaux atteignent une taille plus importante (Jouan et al. 2012; Jouan et al. 2014). Les modèles arrivent difficilement à dissocier ces deux types de nuages de glace (Keita et Girard 2016; Keita et al. 2019). L'utilisation d'un paramétrage approprié pour la nucléation hétérogène des cristaux est essentielle pour représenter correctement les nuages de glace dans les modèles météorologiques et climatiques et pour comprendre ensuite leurs interactions avec les aérosols et le rayonnement. Ainsi, l'objectif de cette thèse est d'améliorer les simulations des nuages de glace observés et caractérisés durant ces dernières années de recherche en Arctique. Ces expériences font suite à des travaux antérieurs de modélisation de Girard et al. (2013) et de Keita et Girard (2016), où il a été démontré que de fortes concentrations d'acide (associées à des masses d'air sous influence anthropique et/ou volcanique) pourraient avoir un effet substantiel sur la concentration en INPs, sur la microstructure des nuages, sur l'équilibre radiatif en Arctique et sur les systèmes météorologiques arctiques. L'originalité du nouveau schéma final, développé dans cette thèse et appelé MYKE (pour Milbrandt, Yau et KEita), réside dans le couplage de la nucléation hétérogène de la glace avec la chimie de l'atmosphère, et en particulier celle des aérosols. Ce schéma de microphysique des nuages couplé permet de prendre en compte la variation spatiale (horizontale et verticale) et temporelle des propriétés granulométriques et physicochimiques des INPs présents dans le domaine de simulation.

La première partie des résultats présente l'implémentation d'un nouveau paramétrage dans le modèle tridimensionnel à méso-échelle WRF. Dans cette première étape, l'angle de contact, qui conditionne l'efficacité de nucléation hétérogène des INPs dans l'approche utilisant la théorie

classique de la nucléation (ou CNT pour *Classical Nucleation Theory*), est fixé et peut prendre chacune des deux valeurs extrêmes d'angle de contact proposées par Eastwood et al. (2008;2009). Ces deux valeurs correspondent à des INPs typiques de poussières terrigènes et à des INPs du même type mais entourés d'une solution acide, l'acidité étant contrôlée par le sulfate (*coated INPs*). Le modèle intégrant le paramétrage a été évalué, d'une part, avec quatre cas d'étude identifiés pendant ISDAC, soit deux cas de TIC-1 et deux cas de TIC-2, et d'autre part, avec les données satellitaires DARDAR, ce qui a permis d'avoir une représentation à la fois spatiale et temporelle des TICs à différentes échelles. Les résultats de cette étude ont montré que le modèle WRF avec le schéma originel pour la nucléation hétérogène de la glace ne parvenait pas à simuler correctement la plupart des nuages de glace observés contrairement au paramétrage utilisant une valeur de l'angle de contact appropriée au type de masse d'air dans laquelle le nuage s'était formé.

La deuxième partie de la thèse présente l'implémentation du paramétrage de nucléation hétérogène de la glace couplé avec la chimie des aérosols (MYKE) dans le même modèle tridimensionnel incluant la chimie atmosphérique, WRF-Chem, et l'application du modèle à trois cas d'étude issus de la campagne ISDAC. Les résultats montrent que MYKE est capable de représenter les caractéristiques microphysiques des TIC-1 et TIC-2 au sommet des nuages, là où la nucléation hétérogène de la glace est le processus le plus important. Aussi dans certains cas, malgré un biais important, MYKE améliore la représentation des concentrations en nombre d'aérosols simulées par WRF-Chem sur l'Arctique. Ce nouveau paramétrage est donc un outil prometteur pour améliorer la simulation des propriétés des nuages de glace en Arctique et l'estimation du forçage radiatif associé.

**Mots clés** : Nuages de glace en Arctique; microphysique des nuages; modélisation numérique; climat arctique; théorie classique de la nucléation; acidification des noyau glaçogènes; WRF-Chem

# CHAPITRE I : NUAGES ARCTIQUES : INTÉRÊT SCIENTIFIQUE

#### 1.1. Introduction

Les effets du réchauffement climatique anthropique sont deux fois plus intenses en Arctique que sur le reste de la planète. En effet, au cours des dernières décennies, les températures en Arctique ont augmenté deux fois plus rapidement qu'en moyenne globale, en grande partie en raison de la rétroaction de la température (Pithan et Mauritsen 2014) et de l'albédo de la glace (Screen et Simmonds 2010; Stroeve *et al.* 2012; Hartmann *et al.* 2013). Les conséquences du réchauffement sont réelles et se traduisent par le recul de la glace de mer, la montée du niveau moyen de la mer et la disparition progressive de la faune et de la flore arctique. Les communautés autochtones sont également touchées et doivent adapter leur mode de vie aux changements de leur environnement (Stroeve *et al.* 2012; Boucher *et al.* 2013). Le réchauffement climatique sera encore plus élevé si les processus de dissipation d'énergie de l'Arctique sont modifiés et n'arrivent plus à remplir leurs rôles (Silicani et al. 2007; Reid et al. 2009). Il est donc primordial de s'intéresser à cette région, puisque l'étude de son évolution très rapide permet de mieux appréhender les processus de changement du climat non seulement au niveau local mais également à l'échelle de la planète (Vincent 2020).

De plus en plus de scientifiques (Fyfe *et al.* 2013; Abbatt *et al.* 2019) et de politiques (UNEP 2014) expriment un intérêt pour les impacts du changement climatique et des émissions anthropiques sur l'Arctique. Bien que des réductions importantes des émissions mondiales de CO<sub>2</sub> sont nécessaires pour ralentir ce réchauffement, il y a également un intérêt croissant pour le potentiel de réduction des polluants à courte durée de vie (SLCFs en anglais pour *Short-Lived Climate Forcers* : SLCFs) (Quinn *et al.* 2008; UNEP 2011; Shindell *et al.* 2012) comme les aérosols et l'ozone. Politiquement, l'action sur les SLCFs peut être particulièrement prometteuse, parce que les avantages de l'atténuation sont vus plus rapidement que pour l'atténuation des

émissions de CO<sub>2</sub> et des co-bénéfices considérables en termes d'amélioration de qualité de l'air y sont associés (Iyer *et al.* 2015).

Dans cette introduction, nous allons présenter la région arctique, c'est-à-dire ses caractéristiques géographiques, climatiques et météorologiques les plus pertinentes pour ce projet, et par la suite essayer de comprendre le rôle de l'interaction entre les aérosols et les nuages, qui sont deux éléments déterminants du climat arctique.

## 1.2. La région arctique

L'Arctique, géographiquement, est la région au-dessus du cercle polaire dans l'hémisphère nord, une ligne imaginaire qui fait le tour du globe à environ 66° 34' N (cercle bleu pointillé sur la figure 1.1)<sup>1</sup>. Certains scientifiques la définissent plutôt comme la zone située au nord de la limite des arbres arctiques (ligne verte sur la carte à droite), où le paysage est gelé et parsemé d'arbustes et de lichens<sup>1</sup>. D'autres chercheurs proposent une limite sur la base de la température. Selon une de ces définitions, l'Arctique comprend tous les endroits situés à des latitudes élevées où la température moyenne quotidienne en été ne dépasse pas 10 degrés Celsius <sup>1</sup>.

Concernant le monde animal, la région arctique abrite des espèces maritimes et terrestres comme l'ours polaire, le renard arctique, le morse, les baleines, le harfang et le faucon. L'océan arctique riche en plancton et en krill a une superficie de 13 millions de kilomètres carrés et plus de 4000 mètres de profondeur. L'océan Arctique est recouvert d'eau de mer congelée appelée banquise, dont la superficie varie au gré des saisons. Elle atteint sa superficie minimale à la fin de l'été (septembre) et son maximum au printemps (mars) autour de 15 millions de

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> "All About Arctic Climatology and Meteorology." National Snow and Ice Data Center. Accessed 4 Septembre 2020.

kilomètres carrés. Chaque année, la banquise prend de l'expansion et s'épaissit pendant l'automne et l'hiver et devient plus petite en superficie et plus mince pendant le printemps et l'été. Mais au cours des dernières décennies, l'augmentation des températures a entraîné une diminution marquée de l'étendue de la glace de mer dans l'Arctique pour chacune des saisons, avec des réductions particulièrement rapides de l'étendue minimale de la glace à la fin de l'été avec, notamment, un minimum record de 3,41 millions de kilomètres carrés en 2012 (Schröder *et al.* 2014). Les changements de la couverture de glace de mer dans l'Arctique ont de vastes répercussions. La fonte de la glace de mer affecte les écosystèmes locaux, les régimes climatiques régionaux et mondiaux et la circulation des océans<sup>2,3</sup>.

La région arctique présente fréquemment une température moyenne sous le point de congélation, une faible humidité spécifique et une faible contribution du rayonnement solaire au bilan radiatif. Durant la saison hivernale, la grande stabilité de l'air limite les mouvements verticaux dans l'atmosphère, notamment à cause de la présence des inversions de température, ce qui favorise la formation des nuages bas, en particulier les stratus. La détection des nuages au-dessus des régions polaires à partir de mesures radiométriques satellitaires dans la fenêtre atmosphérique de l'infrarouge est plutôt difficile, en raison de ces inversions de la température atmosphérique, car les sommets des nuages de basse couche sont souvent plus chauds que la surface sous-jacente (Curry *et al.* 1996; Romano *et al.* 2017).

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> https://www.dfo-mpo.gc.ca/science/publications/ipy-api/index-fra.html

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup> http://www.quebec-ocean.ulaval.ca/pdf\_xls\_files/Fiche1.pdf



Figure 1.1 : Cette carte montre trois définitions de l'Arctique : la limite des arbres, l'isotherme de 10 degrés Celsius en juillet à la surface et le cercle arctique à 66° 34' nord. Crédit: National Snow and Ice Data Center (NSIDC).

L'Arctique est aussi caractérisée par la présence d'une diversité d'aérosols qui proviennent des latitudes moyennes lorsque la circulation atmosphérique est propice à ce transport. Durant l'hiver et au début du printemps, la concentration d'aérosols dans la basse troposphère est souvent équivalente à celle des grandes villes en Amérique du Nord (Shaw 1982). Cette forte concentration constitue ainsi à la brume arctique (*Arctic Haze*). La circulation atmosphérique

joue un rôle important dans le transport des polluants des latitudes moyennes vers la région arctique (Barrie *et al.* 1992; Fisher *et al.* 2011). Elle s'avère efficace pendant l'hiver lorsque la masse d'air arctique se situe au-dessus des grands centres industriels (Barrie et Hoff 1985; Quinn *et al.* 2008; Garrett *et al.* 2010). La dépression centrée au-dessus de la mer de Béring, celle de l'Islande et la position de l'anticyclone des Açores caractérisent une circulation atmosphérique qui fait que l'air remonte jusqu'en Arctique à partir des latitudes moyennes. Selon Abbatt *et al.* (2019) et Fisher *et al.* (2011), cette région est soumise à certains polluants (aérosols) anthropiques qui proviennent des latitudes moyennes de l'Amérique du Nord et de l'Eurasie. Ces polluants transportés directement dans les régions froides et sèches arrivent à parcourir de grandes distances pour atteindre l'Arctique grâce à de faibles quantités de précipitations. Certains de ces aérosols jouent un rôle important car ils servent à la formation de cristaux de glace dans les nuages arctiques.

#### 1.3. L'importance des nuages arctiques

Les nuages jouent un rôle important dans le système climatique, et les variations à long terme de leurs propriétés sont un des principaux perturbateurs du climat (Kay *et al.* 2016). Ils sont importants dans la régulation du bilan radiatif en influençant le rayonnement solaire et le rayonnement infrarouge thermique dans les régions arctiques, où la glace de mer est plus abondante, la fraction des nuages est plus petite, et leur contenu en eau liquide est plus faible (Taylor *et al.* 2015). L'une des principales caractéristiques de l'environnement radiatif en Arctique est l'absence de rayonnement solaire (ondes courtes) pour une portion importante de l'année.

Les effets radiatifs détaillés des nuages dans les régions polaires sont complexes et peuvent varier grandement en raison de la fréquence élevée des inversions de température. Shupe (2011) a montré qu'entre l'hiver et l'été la fraction nuageuse mesurée au sol augmente de 58 à 83% audessus de l'étendue de glace et près de la côte Nord à cinq stations d'observations de l'Arctique

5

(Barrow, Atqasuk, Eureka, Ny'Alesund, Summit). L'effet net sur le bilan radiatif annuel à la surface de ces nuages en Arctique mène à un réchauffement pour la majeure partie de l'année, sauf pendant une courte période au cours de l'été (Intrieri 2002; Shupe et Intrieri 2003). Les nuages de glace se forment dans la basse et dans la haute troposphère tandis que les nuages liquides se forment uniquement dans la basse troposphère, plus chaude (Devasthale et al. 2017). Après l'analyse des observations de la campagne de mesure SHEBA (Surface Heat Budget of Arctic), Shupe (2011) a montré que les nuages composés uniquement de glace sont plus fréquents que les nuages en phase mixte (constitués de glace et d'eau surfondue) avec une longévité similaire. Aussi la présence des nuages de glace pourrait être influencée par la formation des nuages en phase mixte de basse couche durant l'hiver (Girard et Blanchet 2001; Morrison et al. 2011). Les nuages en phase mixte, en raison de la présence de la couche liquide, émettent efficacement un rayonnement à ondes longues et exercent donc un forçage radiatif positif à la surface (Girard et al. 2005; Dong et al. 2010; Sedlar et Devasthale 2012). Bennartz et al. (2013) ont montré que les nuages bas constitués de gouttelettes d'eau liquide, par leurs effets radiatifs, jouaient un rôle clé dans les événements de fonte de glace en été en augmentant les températures près de la surface et sont présents 30 à 50 % du temps en Arctique. Le forçage radiatif du nuage en surface et au sommet de l'atmosphère dépend fortement des quantités intégrées verticalement de l'eau condensée (sous forme liquide ou solide), de la taille et de la forme des cristaux, de la température et de la hauteur du nuage et de l'albédo de surface (Shupe et Intrieri 2003).

Les nuages produisent des précipitations qui influencent fortement le climat de l'Arctique, par exemple l'albédo de la neige sur la glace de mer. La compréhension des processus microphysiques et radiatifs qui influencent la formation des nuages arctiques est donc une étape importante pour la caractérisation des interactions nuage-rayonnement et de leurs effets sur le climat.

#### 1.4. Les processus de formation des nuages de glace

La nucléation est un processus de formation d'embryon thermodynamiquement stable de l'ordre du nanomètre (Vali *et al.* 2015). Durant ce processus, la matière acquiert un plus grand degré d'organisation moléculaire (Jouan 2013). Dans un système constitué uniquement de vapeur d'eau , la nucléation ne peut s'effectuer qu'à partir de l'agglomération d'un grand nombre de molécules qui s'entrechoquent sous l'effet de l'agitation thermique. On dit alors qu'il y a nucléation homogène. La nucléation homogène des gouttelettes d'eau est impossible dans l'atmosphère, car les sursaturations nécessaires pour ce processus seraient de très loin supérieures à celles observées dans l'atmosphère (Pruppacher et Klett 1997). En réalité, les gouttelettes qui composent un nuage sont formées grâce à l'intervention des particules aérosol, un agent externe (les aérosols) ayant pour effet de réduire l'énergie nécessaire pour initier la nucléation. Ce substrat matériel est appelé noyau de condensation (CCN en anglais pour *Cloud Condensation Nuclei*). Il est entendu, que l'initiation des gouttelettes sur des noyaux de condensation suit un processus de nucléation hétérogène.

Les mécanismes de génération de la glace dans l'atmosphère se divisent en deux processus. Les processus primaires se rattachant à la nucléation homogène ou hétérogène des cristaux et les processus secondaires, englobant tous les processus de démultiplication des cristaux de glace. Contrairement à la nucléation homogène des gouttelettes d'eau, le gel homogène d'une gouttelette et la formation d'un cristal à partir de la vapeur d'eau sont des processus de nucléation possibles dans l'atmosphère. La nucléation homogène des cristaux survient à des températures inférieures à -38 °C (congélation spontanée), en absence de particules étrangères susceptibles d'agir comme noyau (Vali 1971; Pruppacher et Klett 1997). À des températures plus élevées, la formation de cristaux se fait par nucléation hétérogène et nécessite donc l'apport d'un agent externe appelé noyau glaçogène (INP en anglais pour *Ice Nuclei Particule*). Les INPs contiennent à leur surface des sites actifs qui ont des surfaces non régulières et/ou des impuretés chimiques et dont la structure cristalline est compatible avec celle de la glace. La petite taille et la nature soluble de la plupart des aérosols anthropiques, en particulier les aérosols de sulfate, de nitrate et de carbone organique, en font de bons noyaux sur lesquels se forment des gouttelettes de nuages liquides,

7

bien qu'ils ne soient pas bons pour la formation de cristaux de glace. En général, la capacité d'un aérosol à initier le gel croit avec sa taille (Welti *et al.* 2009). Il existe encore beaucoup d'inconnues sur les concentrations et les propriétés des INPs qui proviennent du processus de nucléation hétérogène, de ses modes d'action dominants et de la concurrence entre ces modes. Cette incertitude est, notamment, due à l'absence d'instruments fiables permettant de mesurer les minuscules fractions d'INPs dans la population totale d'aérosols en milieu ambiant (DeMott *et al.* 2010b).

Historiquement, les définitions des différents modes de nucléation hétérogènes ont varié et elles pourraient changer à l'avenir. Les définitions ci-dessous sont basées sur Vali *et al.* (2015) qui est le résultat d'une discussion et d'un débat ouvert au cours du processus d'examen par les pairs dans la revue A*tmospheric Physics and Chemistry*. Les discussions entre un certain nombre de groupes de recherche peuvent être retrouvées sur le site du journal<sup>4</sup>. Il existe plusieurs modes de nucléation hétérogène : la nucléation par déposition, la congélation par immersion, la congélation par condensation et le gel par contact. Ces processus illustrés sur la Fig. 1.2 vont maintenant être détaillés.

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup> https://www.atmos-chem-phys.net/15/10263/2015/acp-15-10263-2015-discussion.html



Figure 1.2 : Les différentes types de nucléation primaire dans l'atmosphère (Kanji et al. 2017).

## 1.4.1. La nucléation par déposition

C'est le seul mécanisme de nucléation hétérogène de la glace dans lequel l'eau liquide est absente. Dans un environnement sursaturé par rapport à la glace (RHi > 100%), la vapeur d'eau congèle directement à la surface de l'INP. Ce mécanisme n'est pas significatif pour la formation de glace dans les nuages en phase mixte où les INPs sont d'abord activés sous forme de gouttelettes d'eau liquides (Ansmann *et al.* 2009), mais il est très important pour les cirrus et les nuages de glace en Arctique (Cziczo *et al.* 2013).

#### 1.4.2. Le gel par contact

Le gel par contact décrit la collision entre un INP insoluble interstitiel (particules au sein du nuage mais non-activées) et une gouttelette d'eau surfondue, qui, lors du contact entre l'INP et la surface de la gouttelette, entraîne la congélation de cette dernière. Un autre mécanisme de nucléation par contact est le « *inside-out* » ou l'INP qui entre en collision avec la surface de la gouttelette provient de l'intérieur de celle-ci (Durant 2005). Contrairement au mode de contact conventionnel, ici l'INP n'est pas interstitiel, mais est immergé au préalable dans la gouttelette s'évapore, le volume de celle-ci se réduit et l'interface eau-air migre vers le centre de la gouttelette jusqu'à entrer en contact avec l'INP immergé ; ce contact entre la surface et l'INP immergé étant énergétiquement favorable à la nucléation, cela déclenche la congélation par immersion (Fornea *et al.* 2009).

## 1.4.3. La congélation par immersion

La congélation par immersion fait référence à une nucléation de la glace initiée par un INP immergé dans une solution aqueuse (aérosol humide) ou dans une gouttelette d'eau via l'activation de noyaux de condensation dans le nuage (CCN) lors de la formation d'un nuage liquide (voir Fig. 1.2). Ce mode concerne quelques CCN qui sont également des INPs efficaces. La congélation par immersion est considérée comme étant très importante pour les nuages en phase mixte (Ansmann *et al.* 2009; de Boer *et al.* 2011; Westbrook et Illingworth 2013). Ce processus a été observé dans un grand nombre d'études rapportées par Murray *et al.* (2012). On l'observe généralement lorsque les gouttelettes sont obtenues directement à partir de suspensions (composées d'INPs et de solutions d'eau ou de sel, y compris des échantillons de précipitations naturelles), comme l'a déjà fait Bigg (1953).

#### 1.4.4. La congélation par condensation

La congélation par condensation est désormais qualifiée de mode de congélation hétérogène distinct. Historiquement, seuls trois modes de nucléation de la glace étaient considérés (Fukuta et Schaller 1982), l'un d'entre eux combinant immersion et congélation par condensation. La définition la plus courante de la congélation par condensation est basée sur le fait que la congélation est initiée au même moment que la formation initiale de liquide sur le CCN à des températures en surfusion (Vali *et al.* 2015), comme indiqué dans la Fig. 1.2. Cependant, Vali *et al.* (2015) affirment également qu'il n'est pas clairement établi que la congélation par condensation par condensation est vraiment différente de la nucléation par déposition ou de la congélation par immersion et conseillent de limiter la référence au processus en tant que mécanisme séparé.

#### 1.5. Les interactions aérosols-nuages en Arctique

Les nuages régulent les précipitations et l'équilibre radiatif de l'atmosphère et de la surface, jouant ainsi un rôle important dans le système climatique. La façon dont les aérosols affectent les propriétés des nuages et les précipitations varie fortement selon les types de nuages. La plupart des recherches antérieures sur les effets indirects des aérosols se sont concentrées sur les nuages chauds à basse altitude des latitudes moyennes et tropicales, en grande partie parce que, d'une part, ils (1) couvrent environ un tiers des océans de la planète (Warren *et al.* 1988) et d'autre part, ils sont mieux étudiés sur le plan de la microphysique que les nuages en phase mixte ou les nuages de glace (IPCC 2007).

L'effet "Twomey" pour un nuage chaud consiste à la réduction de la taille des gouttelettes et à l'augmentation de leur nombre sous l'effet de l'augmentation de la concentration des aérosols. Il s'ensuit alors une augmentation de l'albédo des nuages (Twomey 1974). D'autres effets indirects des aérosols ont depuis été suggérés, comme l'augmentation de la durée de vie et de la fraction de couvert nuageux (Albrecht 1989) ainsi que la suppression de la pluie (Rosenfeld 1999) qui sont

tous deux causés par une diminution du rayon effectif des gouttelettes et une augmentation de leur concentration.

Les nuages en phase mixte sont composés d'un mélange de gouttelettes liquides surfondues et de cristaux de glace. De nombreuses études sur les interactions des aérosols avec ces nuages ont été réalisées, en raison de leur importance pour le climat arctique. Il s'agit du type de nuage dominant pendant les trois quarts de l'année, correspondant à la période la plus froide en Arctique (Pinto 1998; Curry et al. 2000). Les CCN et les INPs peuvent tous deux influencer les propriétés des nuages en phase mixte, et par conséquent, leur persistance. Par exemple, l'augmentation de CCN entraîne une augmentation de la concentration de gouttelettes du nuage en phase mixte et une réduction de la taille des gouttelettes, ce qui module fortement l'émissivité radiative dans les grandes longueurs ondes. Par la suite, l'émissivité peut modifier la température à la surface, le flux turbulent à la surface et augmenter l'humidité, intensifiant ainsi la boucle de rétroaction positive entre le refroidissement radiatif au sommet des nuages, le mouvement de l'air et la condensation des gouttelettes (Gayet et al. 2009). Bien que la concentration de CCN soit en général de cinq ordres de grandeurs supérieure aux INPs, les INPs sont d'une importance capitale pour les nuages en phase mixte car ils initient l'effet Bergeron. Ovchinnikov et al. (2011) ont montré qu'en augmentant de 2 à 3 fois la concentration en nombre d'INPs, un nuage en phase mixte pouvait se séparer en deux c'est-à-dire d'un côté un strato-cumulus liquide en dessous et l'autre au-dessus un nuage de glace.

En ce qui concerne les nuages de glace, les INPs agissent directement sur les processus de nucléation de la glace qui déterminent la concentration en nombre initiale et la distribution de la taille des cristaux de glace et ainsi l'impact radiatif du nuage de glace. L'abondance de poussières minérales d'origine naturelle affecte l'équilibre entre la nucléation homogène et hétérogène de la glace. Une augmentation de la concentration en nombre d'INPs augmente la concentration en cristaux de glace et réduit la taille des cristaux de glace. En étudiant les nuages de glace en Arctique, Eastwood *et al.* (2009) ainsi que Sullivan *et al.* (2010) ont montré en laboratoire que certains des meilleurs INPs comme la kaolinite et l'illite peuvent perdre leurs propriétés de nucléation lorsqu'ils sont enrobés d'acide sulfurique (effet SIFI pour en anglais *Sulphate-Induced* 

12

*Freezing Inhibition*) (Eastwood *et al.* 2008; Eastwood *et al.* 2009) et ainsi influencer la fréquence et les propriétés optiques des nuages de glace. Cet effet indirect appelé DES (la déshydratationeffet de serre) par Blanchet et Girard (1994) a possiblement un impact important sur le climat arctique via l'influence des aérosols sur la nucléation des cristaux de glace. À la recherche de la rétroaction DES, un algorithme pour caractériser les différents types de nuages de glaces en Arctique (TIC pour *type of ice cloud*) a été développé par Grenier *et al.* (2009) en utilisant les caractéristiques de détection conjointe des satellites CloudSat (NASA/ASC) et CALIPSO (*Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation*) (NASA/CNES/IPSL) de la mission A-Train (Jouan *et al.* 2012; Jouan *et al.* 2014). C'est une constellation de satellites qui ont pour but de fournir des données sur la constitution de l'atmosphère (nuages, aérosols et constituants chimiques) et qui permettront de mieux comprendre l'évolution des processus du climat.

L'étude de Grenier et al. (2009) s'est concentrée sur les périodes les plus polluées en Arctique, c'est-à-dire durant l'hiver et le début du printemps (Eckhardt et al. 2003; McFarquhar et al. 2011). Un algorithme, le AWAC4 (en anglais pour Arctic Winter Aerosol and Cloud Classification from CloudSat and CALIPSO), entièrement décrit dans Grenier et al. (2009) et Grenier et Blanchet (2010) révèlent l'existence de deux types de nuages de glace selon un critère de taille des cristaux de glace. Les TIC-1 sont constitués d'un grand nombre de petits cristaux de glace en suspension dans l'air (< 30  $\mu$ m), visibles par le lidar et invisibles au radar, alors que les TIC-2 sont détectés par le radar et le lidar et se caractérisent par une faible concentration de gros cristaux (estimés  $> 30 \,\mu$ m) de glace précipitant. On suppose par hypothèse que la formation du TIC-2 est liée à l'acidification des aérosols, qui inhibe et affecte les propriétés de nucléation de la glace des INPs formant ces nuages (Blanchet et Girard 1994). Cette hypothèse sur l'acidification des aérosols a été vérifiée en laboratoire (Eastwood et al. 2009). En conséquence, la concentration de INPs est réduite dans ces zones, ce qui entraîne une moindre concentration de plus gros cristaux de glace. Les résultats (Grenier et Blanchet 2010) ont montré une corrélation entre la variation des propriétés physico-chimiques des nuages TICs et l'augmentation de la concentration d'aérosols durant les épisodes de pollution associés à la brume arctique (Arctic

*Haze*). Par contre, l'échelle spatiale ainsi que la courte période de mesures des satellites n'a pas permis de confirmer l'effet SIFI.

D'autres études plus récentes menées par Jouan *et al.* (2012) utilisent les observations de la campagne de mesure in-situ ISDAC (Indirect and Semi-Direct Aerosols Campaign) (McFarquhar *et al.* 2011). Cette expérience menée par la DOE-ARM (*Departement Of Energy-ARM*) fut exécutée en avril 2008 dans le nord de l'Alaska (NSA, *North Slope of Alaska*). Les résultats de Jouan et al. (2012) ont montré que la différence entre TIC-1 et TIC-2 se trouvait au sommet des nuages, où se produit principalement la nucléation des cristaux. À cause des différences de concentration et de composition chimique des INPs, la croissance des cristaux de glace dans les TIC-2 semble « explosive » alors qu'elle semble plus « progressive » au sommet des TIC-1 (Jouan *et al.* 2012). D'autres études confirment par la suite la forte corrélation entre la présence de TIC-2 et la présence des aérosols acides (McFarquhar *et al.* 2011; Burton *et al.* 2012; Jouan *et al.* 2014; Shantz *et al.* 2014).

## 1.6. La modélisation des nuages de glace en Arctique

L'effort visant à réduire les incertitudes liées aux nuages dans les modèles est limité par notre compréhension physique, qui est, elle-même, limitée par les données de mesures disponibles. Celles-ci sont en particulier rares dans les régions difficiles d'accès comme l'Arctique. La modélisation détaillée des processus de nucléation n'est pas envisageable pour simuler à grande échelle les relations aérosols-nuages. Ainsi, la paramétrisation devient alors une des meilleures alternatives pour représenter les nuages arctiques. Les paramétrages pour la nucléation de la glace ont été élaborés à partir d'études en laboratoire (Vali 1994) ou in-situ pour refléter différentes propriétés physico-chimiques des INPs (Eastwood *et al.* 2008; Eastwood *et al.* 2009; Hoose *et al.* 2010; Girard *et al.* 2013; Keita et Girard 2016; Cirisan *et al.* 2019). Ainsi les paramétrages se distinguent suivant deux approches :

(1) l'approche stochastique ou la théorie classique de la nucléation (CNT en anglais pour *Classical Nucleation Theory*) suppose que la congélation se produit à n'importe quel endroit de la surface de l'INP avec une probabilité (Pruppacher et Klett 1997; Vali 2014; Vali *et al.* 2015);

(2) l'approche déterministe (en anglais *deterministic*) ou singulière (en anglais *singular*) suppose que la congélation a lieu à des conditions fixes de température ou d'humidité (Murray *et al.* 2012; Wheeler et Bertram 2012).

La seconde approche est complexe puisqu'elle implique des informations sur les propriétés de surface ou les anomalies qui servent de sites actifs pour la formation d'embryons de glace.

Le choix de la meilleure approche est toujours en débat dans la communauté (Hoose *et al.* 2010; Keita et Girard 2016; Kanji et al. 2017). La difficulté vient de l'impossibilité de dissocier complètement la température et le temps dans toute approche expérimentale (Vali 2014). Vali (2014) a évalué les paramétrages provenant des deux approches proposées depuis les années 1990 pour conclure que l'approche stochastique est moins performante que l'approche déterministe en raison de la prédominance de sites actifs spécifiques pour activer les INPs. Cependant, ils ont montré que la dépendance temporelle doit être prise en compte dans certaines expériences et dans l'application des paramétrages de nucléation sous certaines conditions. Par ailleurs, l'approche stochastique a du mal à reproduire la dépendance à la température lors de la nucléation par immersion, et la dépendance à la température et à la sursaturation lors de la nucléation par déposition (Eidhammer et al. 2009; Vali et Snider 2015). Kanji et al. (2013) ont montré que l'approche déterministe ne fonctionne que sur les cas de forts mouvement ascendants, consistante avec la dépendance sur la température. Elle est utile en raison d'une dépendance en température, mais elle est d'une utilité limitée dans les modèles à grande échelle qui nécessitent une plage de température plus large. Hoose et Möhler (2012) ont démontré qu'ils ne sont pas fiables en dehors des plages de température dans lesquelles ils ont été élaborés.

Une étude plus récente sur la comparaison des approches, spécifiquement pour les nuages

arctiques, est celle de Keita et Girard (2016). Dans cette étude, plusieurs paramétrages de la nucléation de la glace ont été implémentés dans la version à aire limitée du Modèle Global Environnemental Multi-échelle (Limited-Area version of the Global Multiscale Environmental Model (GEM-LAM ou MRCC5) (Coté et al. 1998) pour simuler les nuages glacés observés au cours de la campagne de mesure ISDAC en Alaska. Le schéma microphysique de Milbrandt et Yau (2005b) a été modifié pour y intégrer de nouveaux paramétrages de la nucléation de la glace par déposition issus d'études en laboratoire. Ces paramétrages suivent soit l'approche stochastique, soit déterministe et ont été comparés à la version originale utilisant le paramétrage de la nucléation par déposition de Meyers et al. (1991). La formulation de Meyers et al. (1991), assez classique, diagnostique une concentration en INPs activés, i.e. en cristaux de glace nucléés, à partir de variables météorologiques uniquement : température et humidité relative par rapport à la glace. Les résultats de simulation des TIC-2 (cas polluées ou acides) observées les 15 et 25 avril et d'un TIC-1(cas non pollué) observé le 5 avril ont montré que le paramétrage original n'arrivait pas à simuler la formation des TIC-2. En outre, l'approche stochastique arrivait à bien simuler les deux différents types de nuage. Ce qui confirme la sensibilité des modèles au choix de paramétrage. Les modèles climatiques et de prévision météorologique ont de la difficulté à simuler la fréquence et la persistance des nuages arctiques observés (voir Figure 1.3) ce qui entraîne des biais dans les flux radiatifs à la surface. Les principales sources d'incertitudes dans les modèles climatiques sont les propriétés des nuages et leur interaction avec les aérosols (Kay et al. 2016).



Figure 1.3 : Concentration en nombre de cristaux de glace d'un TIC-2 observée (ligne pleine rouge) et simulée(ligne pleine bleu) par le modèle GEM-LAM. L'écart entre les courbes en pointillé correspondent aux incertitudes ( $2\sigma$ ) sur la mesure. Le schéma microphysique utilisé est celui à deux moments de Milbrant and Yau (2005).

Ces difficultés sont principalement attribuables aux incertitudes dans les concentrations simulées de gouttelettes de nuage et de cristaux de glace (Curry *et al.* 2000; Morisson *et al.* 2003; Morisson *et al.* 2005; Kay *et al.* 2016; McFarquhar *et al.* 2017). Il est important de simuler adéquatement les mécanismes de formation des nuages arctiques, car ils font partie intégrante et interdépendante de nombreux autres processus physiques tels que les transferts radiatifs, les
mécanismes de rétroaction de la vapeur d'eau, la précipitation ainsi que les transferts de chaleur via la chaleur latente. En analysant les effets des noyaux glaçogènes acidifiés sur les propriétés des TICs et sur le bilan radiatif en surface avec le modèle GEM-LAM, Girard *et al.* (2013) ont montré que l'augmentation du LWP (Liquid Water Path) n'affecte pas l'émissivité des nuages en phase mixte puisqu'à partir d'un certain seuil, ils émettent comme un corps noir (seuil > 10-15 gm<sup>-2</sup>). Le forçage radiatif des nuages dépendra uniquement du IWP (Ice Water Path) contenu dans les nuages de moyenne et haute altitude. Ces changements dans la microstructure du nuage affectent ainsi le bilan radiatif au sommet de l'atmosphère avec une diminution du forçage radiatif des nuages dans l'infrarouge de 0 à -6 Wm<sup>-2</sup> au-dessus de l'Arctique central. Ceci conduit à un refroidissement de l'atmosphère et favorise ainsi la formation de nuages avec une diminution de l'effet de serre de la vapeur d'eau et une augmentation des précipitations. Les résultats montrent que ce refroidissement de l'Arctique est assez grand pour renforcer la circulation troposphérique à grande échelle associée au front polaire à travers l'intensification de la zone barocline (Girard *et al.* 2013).

Les résultats montrent que les particules de poussière acidifiées ont un impact non négligeable sur la microstructure des nuages, la déshydratation de l'atmosphère, le bilan radiatif et la température au-dessus de l'Arctique central. L'acidification des INPs entraîne la formation de nuages de glace de moyenne et haute altitude ayant une faible épaisseur optique et des nuages en phase mixte de basse couche plus fréquents et persistants.

La plupart des schémas microphysiques présentement utilisés dans les modèles de climat ne sont pas assez sophistiqués pour les études détaillées de la microphysique des nuages arctiques et de leur interaction avec les aérosols. Dans les modèles climatiques, un traitement plus réaliste de la microphysique de la glace, en particulier de la concentration des cristaux et de la neige est nécessaire pour améliorer les résultats de la simulation des nuages arctiques (Klein *et al.* 2009; Kay *et al.* 2016).

Les barrières et les contraintes rencontrées lors de simulations antérieures des nuages arctiques et le besoin de développer des schémas microphysiques plus performants, capables de reproduire les interactions complexes entre les nuages et les aérosols, sont à l'origine de l'élaboration de ce projet de doctorat. Le principal objectif de cette thèse doctorale est la caractérisation des processus de la nucléation des nuages glacés arctiques à l'aide de mesures *in-situ*, satellitaires et d'un modèle météorologique couplé à un modèle chimique. Cette approche permet de mieux évaluer et de mieux comprendre leurs interactions entre les aérosols, les nuages et le rayonnement dans l'atmosphère polaire.

Pour la première fois, un modèle couplé chimie-microphysique intégrant des paramétrages de la nucléation de la glace provenant d'étude en laboratoire a été utilisé pour simuler la formation des nuages arctiques. Cela a été possible grâce à une analyse des études en laboratoire qui a permis d'élaborer une relation entre composition chimique des INPs et capacité à nucléer les cristaux. Dans cette étude, l'objectif est de déterminer jusqu'à quel point il est possible d'améliorer la simulation des TICs grâce à l'utilisation de paramétrages qui tiennent compte de la variation temporelle et spatiale, de la concentration ou de la composition chimique des noyaux des aérosols.

Ce premier chapitre « Arctique : intérêt scientifique » vient de présenter le contexte scientifique de l'étude. Le Chapitre II « Les données de références » présente les grands traits des observations et le modèle utilisés dans le cadre de cette thèse.

Le Chapitre III intitulé « *Simulating Arctic Ice clouds during spring using an advanced ice cloud microphysics in the WRF model* » a été publié *dans Journal of Atmosphere* (Keita et al 2019). Il est une évaluation du modèle WRF (*Weather Research and Forecasting*, Skamarock et al., 2008) dans l'espace et dans le temps après avoir implémenté notre paramétrage basé sur l'approche stochastique appliquée à la simulation des nuages de glace dans l'Arctique. Des nuages glacés ont été analysés en étudiant l'influence de la prise en compte du nouveau paramétrage sur certaines propriétés macrophysiques (le contenu en glace du nuage, altitudes des couches nuageuses...) et microphysiques (la concentration en nombre de cristaux de glace, le rayon moyen des cristaux de glace).

Le Chapitre IV « *A new parameterization of ice heterogeneous nucleation coupled to chemistry in WRF-Chem model version 3.5.1: evaluation through the ISDAC measurements* » a été publié dans *Journal of Geoscientific Model Development* (Keita et al, 2020). Il explique et présente les résultats d'un nouveau paramétrage de nucléation de la glace développé dans le cadre de ce doctorat et couplant la chimie des aérosols au processus de nucléation de la glace.

Le Chapitre V « Discussion sur l'analyse statistique » fait une interprétation générale des analyses statistiques faite durant ce projet. Enfin, le Chapitre VI, intitulé la « Conclusion et perspectives » fait un bilan du travail qui a été fait dans le cadre de cette thèse et propose des pistes de recherches futures.

# CHAPITRE II : DESCRIPTION GÉNÉRALE DES DONNÉES ET DES MÉTHODES UTILISÉES

Ce travail se porte essentiellement sur la compréhension des interactions aérosols-nuages dans le processus de nucléation de la glace grâce à l'analyse des observations aéroportées, des données satellitaires et des simulations numériques à l'échelle de l'Arctique. Dans ce chapitre, nous présentons brièvement les différents outils utilisés ainsi que la méthodologie. Les détails seront abordés dans les articles publiés et présentés aux prochains chapitres.

2.1. Le modèle WRF (Weather Research and Forecasting) et sa version avec la chimie WRF-Chem

# 2.1.1. Le modèle WRF

Le modèle WRF (*Advanced Research WRF*) est un modèle de recherche et de prévision météorologique non-hydrostatique (Skamarock *et al.* 2008). Il a été développé grâce à un partenariat entre le NCAR (*National Center for Atmospheric Research*)<sup>5</sup>, la NOAA (*National Oceanic and Atmospheric Administration*) le NCEP (*National Centers for Environmental Prediction*)<sup>6</sup> et d'autres centres de recherches américains et internationaux. Il est généralement utilisé comme un modèle à aire géographique limitée, opérant seulement sur une portion du globe, typiquement inférieure ou égale à l'échelle d'un continent. Cette caractéristique permet

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup> https://www2.mmm.ucar.edu/wrf/users/

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup> https://www.ncep.noaa.gov/

d'augmenter les résolutions horizontales et verticales, donc la prise en compte d'échelles plus fines, sans trop accroître les contraintes informatiques.

WRF permet l'étude des processus atmosphériques, le développement de l'assimilation des données, le développement de la physique paramétrée, la simulation du climat régional, la modélisation de la qualité de l'air, le couplage atmosphère-océan ainsi que les études en atmosphère idéalisée.

WRF comprend une partie dynamique et une partie physique qui interagissent à chaque pas de temps d'intégration à partir des conditions initiales atmosphériques et surfaciques du premier pas de temps. Grâce à approximation non hydrostatique, la dynamique résout explicitement les équations de conservation de l'énergie totale, du moment cinétique et de la masse. La physique utilise des paramétrages ou résout les processus physique comme la convection, la microphysique des nuages (Crétat *et al.* 2011).

Dans le cadre de notre étude, les conditions initiales et aux limites des champs météorologiques sont fournies par les données d'analyse finale (FNL) du modèle de prévision globale (GFS) du NCEP à une résolution de 1°, avec 26 niveaux de pression et mises à jour toutes les 6 h. Puisqu'il n'y a pas de couplage avec un modèle océanique, les conditions de surface sont initialisées avec les champs de températures de surface de la mer de 0.5° archivés par le NCEP (mis à jour toutes les 6 h) et les données sur la glace de mer (mises à jour une fois par jour). La simulation est guidée à chaque pas de temps par une relaxation des champs de vents, de température et d'humidité vers les données FNL mises à jour toutes les 6 heures au-dessus de la couche limite planétaire (PBL) (Stauffer et Seaman 1990).

En ce qui concerne la physique de WRF utilisée, le tableau 2.1 présente les différentes options utilisées. Plusieurs schémas pour la microphysique sont disponibles dans WRF. Nous avons choisi le schéma à deux moments de Milbrandt et Yau (2005a, b), pour sa capacité à améliorer partiellement les simulations des nuages arctiques par rapport aux travaux antérieurs (Keita et Girard 2016). Dans ce schéma, la paramétrisation du gel homogène des gouttelettes d'eau provient de DeMott et al. (1992). La nucléation par déposition et le gel par condensation dépendent de la sursaturation par rapport à la glace (Meyers *et al.* 1991). Le gel par contact est paramétré selon Young (1974); dans ce paramétrage, la concentration en nombre de INP est fonction de la température. La congélation par immersion suit le paramétrage de Bigg (1953).

Option météorologique	option sélectionnée			
La microphysique	Milbrandt et Yau (Milbrandt et Yau 2005b)			
Le rayonnement solaire de courte longueur d'onde	Rapid Radiative Transfer Model for Global climate models (RRTMG) (Iacono <i>et al.</i> 2008)			
Le rayonnement solaire de grande longueur d'onde	RRTMG (Iacono et al. 2008)			
Le paramétrage pour les cumulus	Kain-Fritsch with Cumulus Potential (KF-CuP) (KF- CuP) (Berg <i>et al.</i> 2015)			
La couche limite planétaire	Mellor-Yamada-Janjic (Janjic 1994)			
La couche de surface	Monin-Obukhov Janjic Eta scheme (Janjic 1994)			
La surface terrestre	Unified Noah land-surface model (Chen et DUDHIA			

Tableau 2.1 Les paramétrages ainsi que les options physiques utilisées pour les simulations

2001)

## 2.1.2. Le modèle WRF-Chem

La description et la configuration de WRF-Chem (*Weather Research and Forecasting model, including chemistry*, (Grell *et al.* 2005; Fast *et al.* 2006) utilisé dans cette étude sont détaillées dans les travaux de thèse de Marelle (2016). WRF-Chem est un modèle "*online*" entièrement couplé (Grell et al., 2005), où toutes les variables météorologiques, chimiques et d'aérosols pronostiques sont intégrées au même pas de temps et sont transportées en utilisant les mêmes paramétrages d'advection et de physique (Archer-Nicholls *et al.* 2015). Il est appelé modèle *online* (par opposition à *offline*) car il permet une interaction dans les deux directions entre la météorologie et la chimie (Grell *et al.* 2004). Il utilise la même structure que WRF et permet de prendre en compte les interactions entre aérosols et météorologie, via les interactions aérosols-rayonnement et aérosols-nuages, puisque la composition chimique et le type d'aérosol peuvent influencer les champs météorologiques (par exemple par les changements dans le bilan radiatif ou du type de nuage). Cela fait de lui un candidat idéal pour étudier les interactions entres les aérosols et les processus de nucléations de la glace en Arctique. (Marelle *et al.* 2015; Marelle *et al.* 2016; Raut *et al.* 2017).

Pour cette étude, les modules d'aérosol MOSAIC (*Model for Simulating Aerosol Interactions and Chemistry*, (Fast *et al.* 2006; Zaveri *et al.* 2008)) et de phase gazeuse CBM-Z (*Carbon Bond Mechanism, version Z*, (Zaveri et Peters 1999)) sont utilisés. Le schéma MOSAIC traite explicitement huit espèces d'aérosols à chaque point de grille (le sulfate, le nitrate, le chlorure, ammonium, le sodium, le carbone noir, les matières organiques, et d'autres matières inorganiques (c'est-à-dire les poussières minérales)) (Archer-Nicholls *et al.* 2015; Marelle *et al.* 2015). Ces aérosols sont représentés par des distributions de taille de manière sectionnelle suivant huit classes de taille (ou huit bins) discrètes entre 39 nm et 10 000 nm: [39.0625-78,1]; [78,1-156.25]; [156.25-312.5]; [312.5-625]; [625-1250]; [1250-2500]; [2500-5000]; [5000-10000]. Les

particules dans chaque bin sont supposées être mélangées de façon interne, de sorte que toutes les particules dans une même classe de taille ont la même composition chimique. La coagulation est calculée selon l'approche de Jacobson *et al.* (1994). Dans MOSAIC, l'activation des aérosols utilise la paramétrisation d'Abdul-Razzakk et Ghan (2000;2002). Il inclut les interactions entre les aérosols et les nuages, la chimie aqueuse dans les nuages, et le lessivage humide à l'intérieur et en dessous des nuages. Les particules d'aérosol interstitielles dans les nuages sont traitées explicitement, et peuvent être activées ou remises en suspension selon la saturation, la taille des particules et la composition de l'aérosol. CBM-Z compte 67 espèces et 164 réactions qui classent les composés organiques en fonction de leurs types de liaisons internes. Les taux des réactions photolyses sont calculés à l'aide du schéma de Fast-J (Wild *et al.* 2000). Comme cela est fait dans les travaux de Marelle (2016), les conditions initiales et les conditions aux limites pour les gaz à l'état de traces et les aérosols sont tirées du modèle de transport chimique MOZART-4 (Emmons *et al.* 2010). Les conditions aux limites sont mises à jour toutes les 6 heures.

## 2.2. Les données de référence

Ce travail porte essentiellement sur l'évaluation de certaines variables microphysiques et macrophysiques du modèle WRF (et sa version avec chimie WRF-Chem) par rapport à des observations in situ et à des données satellitaires après implémentation d'un nouveau paramétrage de la nucléation de la glace. Il s'inscrit dans le cadre du projet NETCARE (*Network on Climate and Aerosols: Addressing Key Uncertainties in Remote Canadian Environments*). La majorité des nuages identifiés durant les vols NETCARE étaient des nuages en phase mixte. Pour comparer les résultats de modèle avec des observations aéroportées, nous avons utilisé les données de la campagne de mesure ISDAC, pendant laquelle seulement quelques nuages de glace ont été échantillonnés. Ces quelques cas nous offrent un ensemble de données avec lequel nous pouvons vérifier des éléments clés du comportent de notre modèle. Par ailleurs, ces mêmes cas ont aussi été étudiés dans la thèse de Jouan (2013) et publiés (Jouan *et al.* 2012; Jouan 2013). Ces travaux préliminaires sont donc à la base de notre étude. Le nombre de telles mesures est à ce jour limité.

La méthode proposée ici permettra éventuellement une vérification plus exhaustive des modèles lorsque de nouvelles mesures en Arctique seront disponibles. Une extension de cette étude à la représentation des nuages en phase mixte nécessiterait d'adapter le paramétrage développé dans le cadre de cette thèse en couplant les aérosols avec un paramétrage de nucléation de gouttelettes d'eau liquide dans le nuage (Lin *et al.* 1983; Morrison *et al.* 2009).

#### 2.2.1. Les relevés in-situ de la campagne de mesure ISDAC

Les nuages arctiques simulés par WRF sont évalués par rapport aux observations de la campagne ISDAC (McFarquhar *et al.* 2011) du DOE (*U.S. Department of Energy*) à partir de sites de mesures du programme ARM (*Atmospheric Radiation Measurement*) (McFarquhar *et al.* 2011). C'est une campagne qui a été menée sur la cote septentrionale de l'Alaska en avril 2008. L'objectif fut de collecter une série d'observations essentielles à l'avancée de notre compréhension sur les propriétés des nuages et des aérosols.

Au cours de la campagne de terrain, le Convair-580 du Conseil national de recherches du Canada (CNRC) a été équipé de 41 instruments utilisés pour obtenir des mesures des propriétés des aérosols, de l'état atmosphérique, des propriétés microphysiques des nuages, des précipitations et du rayonnement. Un ensemble de 27 vols scientifiques a été effectué entre le 1er et le 30 avril 2008 dans diverses conditions météorologiques. Les profils de vol étaient constitués de montées et de descentes en spirale à travers les nuages, ainsi que d'étapes à altitude constante à l'intérieur et à l'extérieur des nuages entre Barrow (72°N, 157°W) et Fairbanks (65°N, 148°W).

Jouan et al. (2012 ; 2013) ont realisé des études de cas afin d'analyser le transport des aérosols et les propriétés des nuages de glace en Arctique. Pour la première fois, les microstructures des TIC-1 et TIC-2 en Arctique sont comparées en utilisant les observations in-situ des nuages. Ils ont montré que la plupart des différences entre les TIC1 et TIC2 étaient confinées au sommet des nuages, là où la nucléation de la glace se produit principalement et où l'air est sursaturé par rapport à la pression saturante de la glace. La croissance des cristaux de glace dans les nuages de TIC-2 est explosive, tandis qu'elle est plus graduelle dans les nuages de TIC-1.

Parmi les mesures in situ d'ISDAC, les variables suivantes sont utilisées dans le cadre de notre étude: la teneur en glace des nuages (IWC), la concentration en nombre de cristaux de glace (Ni), la température de la masse d'air (T) et l'humidité relative par rapport à la glace (RHi). Dans le schéma microphysique de Milbrandt et Yau (2005b), les rayons suivent une distribution en taille de forme Gamma dont les paramètres peuvent être déterminés à partir des moments de la distribution (Milbrandt et Yau 2005a; Milbrandt et Yau 2005b). Dans cette étude, le rayon moyen des cristaux de glace (Ri) dans WRF a été calculé de façon diagnostique à partir de IWC et Ni, en supposant une forme sphérique de la glace et des distributions de taille monodispersées. Les variables IWC et Ni sont obtenus par la somme des quatre catégories de phases de glace du modèle, soient les cristaux de glaces du nuage, la neige, la grêle et la neige roulée. Notons qu'il n'y a pas ici de formation de grêle et ni de neige roulée au sommet des nuages glacées tels que simulés par WRF. Le Ri provenant de l'observation ISDAC a été calculé suivant la même équation :

$$R_i = \left(\frac{3 \, IWC}{4\pi\rho_g N_i}\right)^{1/3} \tag{2.1}$$

où  $\rho_q$ =916,7 kg/m<sup>3</sup> est la densité de glace utilisée.

Les instruments utilisés pour dériver les variables et la façon dont les données ont été dérivées sont décrits dans Jouan *et al.* (2012). Ils ont réalisé une étude détaillée des mesures ISDAC obtenues par un grand nombre d'instruments et ont discuté des incertitudes des mesures d'observations. Ils ont estimé que les incertitudes sur les mesures aux valeurs suivantes : 11% pour RHi, 50% pour Ni, 75% pour IWC et 0,5°C pour T. En utilisant les incertitudes d'IWC et de Ni, on peut montrer que l'incertitude sur Ri est de 97%. Les détails sur les incertitudes et les biais liés à ces mesures sont décrits en détail dans McFarquhar *et al.* (2011), Jouan *et al.* (2012), et Keita et Girard (2016).

#### 2.2.2. Les données satellitaires DARDAR

Le protocole expérimental utilisé durant ISDAC consistait à coordonner les vols avec plusieurs avions (NASA DC8, P-3B, B200, NOAA WP-3D) et les passages au-dessus des satellites (A-Train). Cette stratégie facilite la comparaison des produits DARDAR et ISDAC. Les produits DARDAR (Delanoë et Hogan, 2008, 2010) fournissent des propriétés des nuages de glace en utilisant les mesures combinées de MODIS (*MODerate resolution Imaging Spectroradiometer*) ainsi que deux satellites issus de la constellation A-Train, CloudSat et CALIPSO.

L'algorithme utilisé pour récupérer les propriétés des nuages de glace, est appelé Varcloud. Il a été développé à l'université de Reading par Julien Delanoë et Robin Hogan, (Delanoë et Hogan, 2008, 2010).

Parmi les produits DARDAR, les variables suivantes sont utilisées dans cette étude : le IWC restitué selon la méthodologie de (Delanoë et Hogan (2008). Le rayon effectif (Re) est obtenu en utilisant la formule de Foot (1988) :

$$R_e = \frac{3}{2\rho_i} * \frac{IWC}{\sigma_{ext}}$$
(2.2)

Où  $\sigma_{ext}$  est le coefficient d'extinction  $m^{-1}$  qui traduit la capacité d'une particule à diffuser et absorber le rayonnement à la longueur d'onde de l'instrument.

Dans notre étude, en considérant une distribution de taille de type Gamma pour le calcul de  $R_e$ , comme cela est fait dans le schéma microphysique de Milbrandt and Yau (2005), un calcul simple montre que  $R_e = 1.65R_i$ . McFarquhar et Heymsfield (1998), après comparaison de plusieurs formules de rayons effectifs ont montré qu'ils existait des différences substantielles entre les définitions de Re, rendant leur interprétation et leur comparaison avec  $R_i$  délicates. Martin *et al.* (1994) montrent que le rapport entre  $R_i$  et  $R_e$  pouvait varier de 0.67 à 0.80. Cet écart dépend de plusieurs facteurs comme les types de nuage (provenant d'une masse d'air maritime ou continental), de la structure verticale du nuage, de la concentration en masse ou en nombre de cristaux de glace ou de gouttelettes d'eau. Dans les prochains chapitres, nous prenons en compte l'implication de cet écart lors de la discussion des résultats.

# CHAPITRE III : SIMULATING ARCTIC ICE CLOUDS DURING SPRING USING AN ADVANCED ICE-CLOUD MICROPHYSICS IN THE WRF MODEL

This chapter is presented in the format of a scientific article. It was published in 2019 in the Journal of Atmosphere. The design of the research and its performance together with the analysis of data and the redaction of this article are entirely based on my work, with the co-authors involved in the supervision of all these tasks.

Ce chapitre est présenté sous le format d'un article scientifique. Il a été publié en 2019 dans *Journal of Atmosphere*. La conception, la réalisation, l'analyse des données et la rédaction de cet article sont entièrement basées sur mon travail, les coauteurs ayant participés à la supervision de toutes ces tâches. Setigui Aboubacar KEITA<sup>1\*</sup>, Éric GIRARD<sup>1,†</sup>, Jean-Christophe RAUT<sup>1,2</sup>, Jacques PELON<sup>2</sup>, Jean-Pierre BLANCHET<sup>1</sup>, Olivier LEMOINE<sup>1</sup> and Tatsuo ONISHI<sup>2</sup>

<sup>1</sup> ESCER Centre, Department of Earth and Atmospheric Sciences, Université du Québec à Montréal, H3C 3P8, Montréal, Québec, Canada

<sup>2</sup> LATMOS/IPSL (Laboratoire Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales/Institut Pierre Simon Laplace), Sorbonne Université, UVSQ (Université de Versailles-St Quentin), CNRS (Comité National de la Recherche Scientifique), 75052 Paris, France

\* Correspondence: <u>keita.setigui\_aboubacar@courrier.uqam.ca</u>; Tel: +1 514-449-5099

† Deceased

**Abstract:** Two Types of Ice Clouds (TICs) have been characterized in the Arctic during the polar night and early spring. TIC-1 are composed by non-precipitating small ice crystals of less than 30 μm. The second type, TIC-2, are characterized by a low concentration of large precipitating ice crystals (>30 μm). Here, we evaluate the Weather Research and Forecasting (WRF) model performance both in space and time after implementing a parameterization based on a stochastic approach dedicated to the simulation of ice clouds in the Arctic. Documented reference cases provided us in situ data from the spring of 2008 Indirect and Semi-Direct Aerosol Campaign (ISDAC) campaign over Alaska. Simulations of the microphysical properties of the TIC-2 clouds on 15 and 25 April 2008 (polluted or acidic cases) and TIC-1 clouds on non-polluted cases are compared to DARDAR (raDAR/liDAR) satellite products. The results show that the stochastic approach based on the classical nucleation theory, with the appropriate contact angle, is better than the original scheme in the WRF model to represent TIC-1 and TIC-2 properties (ice crystal concentration and size) in response to the IN acidification.

**Keywords:** Arctic ice clouds; cloud microphysics; numerical modeling; WRF; classical nucleation theory; ice nuclei acidification

#### 3.1. Introduction

Over recent decades, temperatures in the Arctic have increased at more than twice the global rate, largely as a result of growing concentrations of greenhouse gases and complex feedback processes (Hartmann *et al.* 2013). One of the factors influencing the Arctic rapid warming is how clouds interact with aerosols and radiation (Schmale *et al.* 2021). Clouds play a fundamental role in regulating the radiative balance by influencing both solar radiation and infrared radiation at both the surface and at the top of the atmosphere. One of the main features of the Arctic radiative environment is the absence of solar radiation for a significant portion of the year. Low temperatures and high relative humidity during the cold season make the Arctic a very suitable environment for the formation of ice clouds (Wyser 2005), both in the upper and lower troposphere (Shupe 2011; Devasthale *et al.* 2017). Shupe (2011) notes that ice-only clouds are more common than mixed-phase clouds (MPCs) with similar longevity based on mean-annual statistics over three observation sites (Barrow, Eureka, SHEBA). However, the existence of MPCs is important in these regions during winter, when surface warming resulting from cloud infrared radiation is not compensated by cooling from the increased cloud shortwave albedo via Twomey effect (Girard et Blanchet 2001; Shupe et Intrieri 2003).

Representation of cloud microphysical processes in climate models is challenging because fundamental microphysical processes are often poorly represented as compared to more complex limited-area models (Zhang *et al.* 2014). This is particularly true when considering a higher level of complexity through aerosol-cloud interactions (Morisson *et al.* 2003; Wang *et al.* 2014). For example, despite the evolution of our knowledge on the processes of nucleation, growth and dissipation of ice crystals (McFarquhar *et al.* 2017), the performance of respective parameterizations in models might differ due to the modelling scale and scientific objective. Parameterizations designed for lower latitudes are nevertheless often used on the global scale without being properly tested at high latitudes. The "parameterization way of thinking" turns out to be a relevant method to improve models using observations (Kay *et al.* 2016). The formation of ice crystals can be triggered through homogeneous freezing at very cold temperatures, but also through different heterogeneous nucleation processes upon aerosol particles acting as ice nuclei particle (INP) (Pruppacher et Klett 1997). Over the past 10 years, several parameterizations of homogeneous and heterogeneous ice nucleation have been developed to reflect the various physical and chemical properties of aerosols in addition to temperature and/or ice supersaturation and distribution functions (Hoose et Möhler 2012; Wang *et al.* 2014). (Keita et Girard 2016) tested different parameterizations for the ice nucleation based on stochastic and deterministic approaches (Kanji *et al.* 2017) in the limited-area version of the Global Multiscale Environmental Model (GEM-LAM) (Coté *et al.* 1998). After comparing simulations of dynamics and microphysics variables against in situ observations from the Indirect and Semi-Direct Aerosol Campaign (ISDAC) (McFarquhar *et al.* 2011), they found that the stochastic scheme was the most suitable parameterization for simulating ice clouds in the Arctic. But the assessment of the model performance, both in space and time, had not been performed yet. Heterogeneous nucleation requires less supersaturation and is favored in low-level cloud systems. Acidification of particles has been raised as potentially playing a significant inhibition role (Girard *et al.* 2013), and evidence of such effect has been investigated from airborne and space observations (Jouan *et al.* 2014).

During ISDAC, research flights were coordinated with CloudSat and CALIPSO (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation) satellite overpasses. This colocation of satellite and in situ field data provides an efficient way to study Arctic clouds processes, to develop and to evaluate new parameterizations. Satellite instruments have the advantage of providing data over much larger spatial scales and the cloud vertical structure. Ten years satellite observations from the A-train, and particularly with the spaceborne CloudSat radar and CALIOP (Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization) lidar onboard the CALIPSO platform have deeply improved Arctic cloud-climate studies. Since polar clouds are geometrically and optically thinner than mid-latitude clouds, those active sensors return signals of the cloud vertical structure that are less attenuated in the vicinity of the Arctic surface (Kay *et al.* 2016). As a result, the vertical distribution of aerosol, cloud and hydrometeors structure is observed by the tandem CloudSat and CALIPSO in polar regions with much deeper penetration through the atmosphere than at lower latitudes (Winker *et al.* 2009; Stephens *et al.* 2018). Figure 3.1 shows the study

33

location where ISDAC campaign took place and several satellite orbits that will be relevant to the current study. In particular, the Lower panel of Figure 3.1 illustrates the presence of thin ice clouds (semitransparent to the lidar) where ice nucleation occurs directly on volcanic plumes. These plumes where traced back (Jouan *et al.* 2012; Jouan *et al.* 2014) to several active volcanoes in Kamchatka and Aleutian Islands during the study period. Although, no composition measurements were available from ISDAC, it is known (Jouan *et al.* 2014; Pitari *et al.* 2016), that such volcanic emission are typically composed largely of sulfuric and nitric acids aerosols.

The main objective of this study is to improve the ice nucleation parameterization in the Weather Research and Forecasting model (WRF) model using one of the best heterogeneous ice nucleation parameterizations developed by Keita et Girard (2016). From previous studies (Grenier et al. 2009; Grenier et Blanchet 2010), two types of ice clouds (TIC) have been distinguished. The first type (TIC-1) is composed by a large concentration of small ice crystals whereas the second type (TIC-2) is composed of a smaller concentration of larger and precipitating ice crystals. As a reference, we simulate cloud distributions and structures corresponding to four well documented (Jouan et al. 2014) cloud cases obtained during ISDAC. The observed clouds are characterized by comparable levels of Ice Water Content (IWC), but different air mass origins. In particular, the occurrence of various acid aerosols concentrations in those air masses impacted the ice nuclei properties and the cloud microstructure (Jouan et al. 2012; Jouan et al. 2014). Based on these local studies, we attempt to generalize the effect of INP acidification on polar cold clouds and then verify this extrapolation against a large ensemble of observations. Thus, the new simulations are evaluated through a comparison with both ISDAC in situ data and DARDAR (raDAR/liDAR) extended satellite products. The results represent an effort to link regional modeling, remote sensing and laboratory studies mentioned above with in situ observations of ice clouds. In Section 3.2, the model experiments and ice nucleation parameterizations are described. Section 3.3 presents the observational dataset. Results are presented and discussed in Section 3.4, and conclusions are drawn in Section 3.5.



Figure 3.1: Upper panel: Model domain (yellow contour) used in this study centered over Fairbanks with a horizontal resolution of 10 km. The blue, red, green and magenta lines represent CloudSat-CALIPSO T12, T13, T21 and T29 tracks, respectively. The orange circles represent the different ISDAC flights: F12, F13, F21 over Barrow and F29 over Fairbanks. An observation box (red rectangle) between (65°N, 142°W) and (72°N, 162°W) has been defined to identify the area where all flights have been performed. Lower panel: Lidar cross-section from CALIPSO orbit (white dash-dot line in upper panel) taken about 12 h prior to F21 ISDAC flight showing several volcanic plumes and formation of thin ice cloud (TIC-2) directly on the aerosol plumes in the ISDAC campaign region.

# 3.2. WRF

## 3.2.1. Model Description and Set-up

The Advanced Research WRF (Weather Research and Forecasting) model Version 3.5.1 (Skamarock *et al.* 2008) is used in this study to simulate the evolution of clouds during ISDAC campaign, from 1 to 30 April 2008, over the domain shown in Figure 1. The domain is based on a Lambert projection centered on Barrow, Alaska over 160 × 100 grid cells with a horizontal resolution of 10 km and 55 vertical levels between the surface and 50 hPa. Three simulations have been carried out in this study (Section 3.3). The first 4 days of the simulations (1–4 April included) are used for model spin-up. WRF options and parameterizations used in this study are summarized in Table 3.1. Meteorological initial and boundary conditions of the atmospheric fields are provided by NCEP (National Centers for Environmental Prediction) Global Forecast System (GFS) Final Analysis (FNL) data at 1° resolution, with 26 pressure levels and updated every 6 h. The surface conditions are initialized with NCEP-archived 0.5° sea-surface temperatures fields (updated every 6 h) and sea ice data (updated once a day). The simulation is nudged to FNL winds, temperature, and humidity updated every 6 h (Stauffer et Seaman 1990) above the planetary boundary layer (PBL).

Meteorological option	Selected option			
Microphysics	Milbrandt and Yau (Milbrandt et Yau 2005b)			
Shortwave radiation	Rapid Radiative Transfer Model for Global climate models (RRTMG) (Iacono <i>et al.</i> 2008)			

Table 3.1: Parameterizations and options used for the WRF simulations.

Longwave radiation	RRTMG (Iacono et al. 2008)			
Cumulus	Kein Fritzeh CuD (KE CuD) (Denz et al. 2015)			
parameterization	Kain-Friisch-CuP (KF-CuP) (Berg et al. 2015)			
Planetary	Mellor-Yamada-Janjic (Janjic 1994)			
boundary layer				
Surface layer	Monin-Obukhov Janjic Eta scheme (Janjic 1994)			
Land surface	Unified Noah land-surface model (Chen et DUDHIA 2001)			

# 3.2.2. Modification of the Microphysical Scheme

In this study, we use the two-moment version of Milbrandt and Yau (2005a,b) cloud microphysical scheme (Table 3.1). It includes the following prognostic variables: the mixing ratio and the number concentration of cloud liquid water, cloud ice water, rain, snow, hail and graupel. In the model, all ice particles are assumed to be only irregular particles under the form of bullet rosettes. In this section, the emphasis is put on the modification of the parameterization of ice crystal nucleation, central in this study.

In the atmosphere, ice crystals form through heterogeneous and homogeneous ice nucleation. Homogeneous freezing is the spontaneous freezing of a water (or haze) droplets. According to Pruppacher et Klett (1997), the homogeneous freezing rate of cloud droplets is significant at temperatures below ~-38 °C. The parameterization for homogeneous freezing of water droplets follows DeMott *et al.* (1992) in the range -30 °C to -50 °C. Heterogeneous nucleation involves solid substrates called INP, initiating the formation of ice crystals. Several mechanisms are known by which aerosol particles promote the formation of the ice phase in clouds: deposition nucleation, immersion freezing, condensation-freezing and contact freezing. In the original version of the Milbrandt et Yau (2005b) microphysical scheme, deposition and condensation-freezing are functions of water vapor supersaturation with respect to ice following Meyers *et al.* (1991). The deposition mode involves the growth of ice directly from the vapor phase, whereas condensation freezing occurs if the ice phase is formed immediately after condensation of water vapor on a solid particle as liquid intermediate. Contact freezing is parameterized following Young (1974) where the number concentration of contact INP is a function of temperature following Meyers *et al.* (1991). In the contact formation mode, ice nucleation occurs on a solid particle reaching contact with a water droplet. Immersion freezing of activated rain and cloud water droplets follows the parameterization of Bigg (1953). In the immersion mode, ice nucleation or a haze particle in sub-saturated air with respect to liquid water or in an activated cloud water droplet.

Several modifications have been made to the original version of the microphysical scheme to account for the heterogeneous ice nucleation on both uncoated and sulfuric acid-coated INP. Deposition ice nucleation on uncoated INP and immersion freezing of sulfuric acid-coated INP are parameterized following Girard *et al.* (2013). These parameterizations are based on the classical nucleation theory (CNT) (Pruppacher et Klett 1997). The CNT is a stochastic approach in which the nucleation rate depends on the contact angle  $\theta$  between the ice embryo and the INP. In the parameterization used in Girard *et al.* (2013), the contact angle is derived from the heterogeneous nucleation rate, which is in turn derived from ice onset measurements of Eastwood *et al.* (2008) et Eastwood *et al.* (2009). Their laboratory studies used uncoated ( $\theta = 12^{\circ}$ ) and sulfuric acid-coated ( $\theta = 26^{\circ}$ ) kaolinite particles to derive a parameterization based on a contact angle between ice and a substrate. Using a parameterization of ice nucleation on kaolinite particles is supported by the favorable meteorological situation encountered during the ISDAC period. Field observations have highlighted the presence of a large occurrence of haze, smoke and dust particles during ISDAC period (Warneke *et al.* 2009; Burton *et al.* 2012; Jouan *et al.* 2012; Atkinson *et al.* 2013). Besides, in the Arctic region, a large fraction of the aerosol particles

(including insoluble aerosols such as mineral dust) can be coated with acidic sulfate (Bigg 1980). Eastwood *et al.* (2009) results support the idea that anthropogenic emissions of  $SO_2$  and  $NH_3$  may influence the ice nucleating properties of mineral dust. For example, the relative humidity required for ice nucleation increase when INP are coated with acidic sulfate. This shift in ice nucleation conditions may influence the frequency and properties of ice clouds.

In a given time step ( $\Delta t$ ) the number concentration of nucleated ice crystals ( $N_f$ ) is given by:

$$N_f(\Delta t) = N_0 [1 - exp \left(-JA_{kaolinite}\Delta t\right)]$$
(3.1)

where  $A_{kaolinite}$  is the surface area of the kaolinite particles,  $N_0 = 10^4 \text{ m}^{-3}$  is the total number concentration of available INP and *J* is the nucleation rate of embryos per unit surface of particles and is defined as:

$$J(\mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1}) = Bexp\left(\frac{-\Delta \mathrm{G}^*}{kT}\right)$$
(3.2)

where  $B = 1.521 \ 10^{37} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  is the pre-exponential factor (Pruppacher et Klett 1997), *k* the Boltzmann constant in JK<sup>-1</sup>, *T* is the temperature in kelvin (K),  $\Delta G^*$  the critical Gibbs free energy for the formation of an ice embryo in joules (J), defined as:

where 
$$\Delta G^* = \frac{16\pi\sigma_{iV}^3 f(\cos\theta)}{3\rho_i^2 R_v^2 T^2 \ln^2 S_i}$$
 (3.2)

 $\sigma_{iv} = 106.5 \ 10^3 \text{J.m}^{-2}$  the surface tension between ice and water vapor,  $\rho_i = 0.9 \text{ g.cm}^{-3}$  the bulk ice density,  $R_v = 461.5 \text{ J.kg}^{-1}\text{K}^{-1}$  the gas constant for water vapor, *T* the temperature and *S<sub>i</sub>* the saturation ratio with respect to ice. The  $f(\cos\theta)$  is a monotonic decreasing function of the cosine of the contact angle  $\theta$  as defined by Pruppacher et Klett (1997) for an infinite plane surface.

### 3.2.3. Simulation Description

Three versions of the microphysical scheme are used for this simulations and detailed in Table 3.2. WRF refers to the original version of the Milbrandt et Yau (2005b) microphysical scheme without any modification. Hence, it does not refer to any particular type of air masses. WRF\_p and WRF\_np, respectively "polluted" (acidic) and "not polluted" (clean) air masses, are the modified versions of the scheme based on the CNT and the parameterizations described in Section 3.2. and are associated to the deposition and immersion freezing nucleation modes. WRF\_np and WRF\_p use a constant contact angle of  $\theta = 12^{\circ}$  and  $\theta = 26^{\circ}$  representative of uncoated and sulfuric acid-coated kaolinite particles, respectively.

Table 3.2: Ice nucleation parameterization schemes used for the simulations. The original microphysical scheme (WRF) is based on the singular hypothesis (the singular approach assumes nucleation to occur at specific relative humidity and temperature (Murray et al. 2012; Wheeler et Bertram 2012)), while WRF\_np and WRF\_p are based on the stochastic theory, which includes a contact angle ( $\theta$ =12° and  $\theta$ =26°, respectively).

Model Version	Author	Species	Ice nuclei state	Ice nuclei contact angle
WRF_np	(Eastwood <i>et al.</i> 2008)	Kaolinite	Uncoated	$\theta = 12^{\circ}$
WRF_p	(Eastwood <i>et al.</i> 2009)	Kaolinite	Coated	$\theta = 26^{\circ}$
WRF	(Meyers <i>et al.</i> 1991)			

### 3.3. Observation data

We present in this section the different observation datasets used in this study: the ISDAC campaign dataset (Section 3.3.1) and the DARDAR (raDAR/liDAR) satellite products (Section. 3.3.2).

# 3.3.1. ISDAC campaign

Arctic clouds simulated by WRF are evaluated against observations from the U.S. Department of Energy (DOE) Atmospheric Radiation Measurement (ARM) ISDAC campaign (McFarquhar *et al.* 2011), which was conducted at North Slope of Alaska during April 2008. ISDAC primary aim was to examine the influence of the Arctic aerosol on cloud microphysical properties and on the surface energy balance. During the field campaign, the National Research Council of Canada (NRC) Convair-580 was equipped with 41 instruments including a set of dynamic, thermodynamic, radiation, aerosol and microphysical sensors. A set of 27 scientific flights was performed between April 1 and April 30, 2008 under various weather conditions. Flight profiles consisted of spiral, ramped ascents and descents through clouds, and constant altitude legs within and outside clouds between Barrow (72°N, 157°W) and Fairbanks (65°N, 148°W). The strategy was to coordinate flights with multiple aircrafts (NASA DC8, P-3B, B200, NOAA WP-3D) and satellite overpasses (A-Train).

The Convair-580 flew 27 sorties and collected data using an 41 cloud and aerosol instruments for a total of more than 100 h of flight time on 12 different days. Among the ISDAC in situ measurements, the following variables are used in this study: ice water content (IWC), number concentration of ice crystals (Ni), temperature (T) and relative humidity with respect to ice (RH<sub>i</sub>). The mean ice crystal radius (Ri) is calculated from IWC and Ni assuming spherical shape of ice and monodisperse size distributions. The instruments used to derive the variables and the way the bulk data were derived are given in Jouan *et al.* (2012). They have performed a study of the ISDAC measurements derived by a variety of instruments and discussed the uncertainties in measurements/observations. They found that the uncertainties on the measurements are the

following:  $\pm 11\%$  for RH<sub>i</sub>,  $\pm 50\%$  for Ni,  $\pm 75\%$  for IWC and  $\pm 0.5$ °C for T. Using the IWC and Ni uncertainties, it can be shown that the uncertainty on Ri is  $\pm 97\%$ . Details on uncertainties and biases related to these measurements are described in detail in McFarquhar *et al.* (2011), Jouan *et al.* (2012), Keita et Girard (2016).

Table 3.3 presents a brief description of the four specific ISDAC flights that have been used to validate the new ice nucleation parameterization. Those flights have been selected following considerations described in Keita et Girard (2016). We have defined an observation box between (65°N, 142°W) and (72°N, 162°W) to identify the area where all flights have been performed. This flight area is schematically reported in Figure 3.1.

Flight number Location	Date (in 2008)	Time Profile	Ni/Ri	Air Mass
F12	5 April	01:15:35 -	(~3000 L <sup>-1</sup> )/(10-	Drigting
Barrow	5 April	01:34:05	30 um)	FIIstille
F13	5 April	20:35:26 -	(100-200 L <sup>-</sup>	Drigting
Barrow	5 April	21:00:05	$^{1})/(25-50 \text{ um})$	Flistille
F21	15 April	00:55:40 -	(< 30 L <sup>-1</sup> )/(50–	Dollutod
Barrow	15 April	01:17:24	140 um)	ronuted
F29	20 Amril	04:08:22 -	(5-30 L <sup>-1</sup> )/(80–	Dolluted
Fairbanks	29 April	04:27:51	180 um)	ronuted

Table 3.3: Flight number, location, dates, time, Ni, Ri and type of air mass of the ice clouds investigated in this study.

Clouds observed on 5 April 2008 during the F12 (01:15:35 – 01:34:06 UTC) and the F13 (20:35:26 – 21:00:06 UTC) flights are characterized by a relatively large crystal concentration Ni and small ice crystal radius Ri throughout the cloud. These clouds are of TIC-1 clouds according to the criteria of Jouan *et al.* (2012), formed in a pristine environment. During this study, we analyzed measurements from the Passive Cavity Aerosol Spectrometer Probe (PCASP) instrument developed by Particle Measuring Systems (PMS). The PCASP is an optical particle

counter used for measuring the concentration and size distribution of particles, assuming a spherical shape and refractive index between 1.52 and 1.59 in the shortwave domain. These particles are in the size range  $0.12-3 \mu m$ . Figure 3.2 presents the aerosol concentrations observed in clear air just before entering the cloud regions. It shows that these air masses were relatively clean and a weak vertical variability of aerosol concentrations, staying mostly below 200 cm<sup>-3</sup> from 800 to 400 hPa (Atkinson *et al.* 2013). Average concentrations are around 100 cm<sup>-3</sup>.



Figure 3.2: Aerosol concentrations measured by the PCASP in situ sensor onboard the Convair-580 just before entering the clouds for flights F12, F13, F29.

In the second half of the campaign, ice clouds observed on 15 April 2008 during F21 flight (00:55:40 – 01:42:07 UTC) and on 25 April 2008 during F29 flight (04:08:22 – 04:27:51 UTC) are characterized by a small ice crystal concentration Ni, corresponding to the definition of TIC-2

clouds according to Jouan *et al.* (2012). It should be noted that there were no PCASP measurements during F21 flight. Aerosol concentrations measured during F29 flight are also reported in Figure 3.2. The PCASP instrument showed that there was a much higher concentration of aerosol particles in the lower troposphere (more than twice those observed during F12 and F13, e.g., larger than 400 cm<sup>-3</sup>) and more particularly at pressures below 550 hPa, near cloud top where peak concentrations exceeding 1000 cm<sup>-3</sup> have been measured. This increase in aerosol particles is supported by satellite observations from the Ozone Monitoring Instrument (OMI) over the North Slope of Alaska, which shows much larger SO<sub>2</sub> concentrations at the end of the ISDAC campaign. These large deviations have been traced to volcanic activities in Kamchatka and Aleutian regions (Jouan et al. 2012; Atkinson et al. 2013; Jouan et al. 2014) that are known to be acidic. Clouds sampled during both F21 and F29 appear to form mostly in air masses containing dust and smoke, possibly with a highly acidic coating. Jouan et al. (2014) found that the large SO<sub>2</sub> concentrations over the North Slope of Alaska during this period were due to volcanic emissions in the Aleutians. Furthermore, INP measurements on 15 April in Barrow show a very low INP concentration, compatible with the hypothesis of acidic inhibition during this period (Jouan et al. 2012; Atkinson et al. 2013; Jouan et al. 2014).

## 3.3.2. DARDAR Satellite Products

The DARDAR dataset is derived from a combination of the CloudSat, CALIPSO and MODIS (MODerate resolution Imaging Spectroradiometer) observations (Delanoë et Hogan 2008; Delanoë et Hogan 2010). Cloud parameters such as vertical profiles of thermodynamic cloud phase, IWC, extinction and effective radius (Re) are obtained from a variational synergistic algorithm. In regions of the cloud detected by just one of these two instruments, their algorithm retrieves parameters from radar or lidar measurements alone (Delanoë et Hogan 2010). The ice particle mass is obtained assuming the mass-diameter relationship proposed by (Brown. et Francis. 1994), and the effective radius Re is derived using the results of Foot (1988). The RMSE (root mean square error) in IWC and Re derived from DARDAR are retrieved according to the methodology of Delanoë et Hogan (2008). Jouan *et al.* (2012) found that within TICs, the normalized RMSE of IWC and Re from DARDAR product ranged from 10 to 30% for IWC and

44

less than 20% for Re. Retrieved properties are reported at the CloudSat horizontal resolution (about 1.4 km) and CALIPSO upper tropospheric vertical resolution (60 m). The lidar is highly sensitive to aerosol, haze and thin clouds like sub-visible cirrus. The backscattered signal can be observed down to cloud base for thin clouds with an optical depth less than about 3, where the signal is not completely attenuated (Grenier *et al.* 2009). This applies most ice clouds in the high latitudes, especially during the cold season. When the optical depth exceeds 3, the radar is still capable of penetrating the cloud down to its base (Delanoë et Hogan 2008; Delanoë et Hogan 2010). Delanoë et Hogan (2010) have demonstrated the performance of DARDAR to retrieve cloud properties in cirriform layers and precipitating areas showing simultaneously thin and very thick ice clouds to highlight the radar–lidar complementarity in their algorithm. Comparative studies of microphysical properties in cirrus clouds between DARDAR products and in situ observations have shown the reliability of DARDAR retrievals (Deng *et al.* 2013) for a vast range of cloud properties found in the Arctic.

DARDAR V1.0 data are used in this study. Four DARDAR tracks as close as possible (in terms of Euclidean distance) to the four synchronous ISDAC flights have been selected to validate the model simulations over a larger area at the synoptic scale (Figure 2.1): T12 (4 April 2008, 06:39:28–07:25:38UTC), T13 (5 April 2008, 06:36:58–07:027:43 UTC), T21 (14 April 2008, 06:36:30–07:27:51 UTC) and T29 (24 April 2008, 06:38:53–07:26:42 UTC) associated to flights F12, F13, F21 and F29, respectively. The DARDAR mask was used to identify ice cloud phase (Jouan *et al.* 2012). On each satellite overpass, the number of crystals Ni is calculated from both DARDAR-derived IWC and Re according to Jouan *et al.* (2012). The comparative analysis is focused in the part of the cloud where both radar and lidar observations are detecting ice to better constrain retrievals (above 4 km).

#### 3.4. Results and Discussion

This section is dedicated to present comparisons of model simulations (WRF, WRF\_p and WRF\_np) against observations, followed by a discussion of the results. The vertical profiles of the simulated and in situ observed variables are compared over a region of 10 by 10 km centered around the location of ISDAC along the flight tracks. ISDAC in situ measurements have been averaged every 20 s, corresponding to a vertical resolution of ~45 hPa, during ascents and descents through clouds. Modeled WRF outputs are linearly interpolated to the pressure levels of these observations and temporally averaged over a three-hour period encompassing the area of ISDAC flights. DARDAR products are averaged over the aircraft flight range identified in Figure 3.1 (box between (65°N, 142°W) and (72°N,162°W) and serve as a basis for comparison against model results over the same region. For each vertical cloud profile, we examine cloud microphysical properties in three broad height regions, defined as follows: low-level clouds when pressure is higher than 650 hPa (altitude lower than ~3.4 km), high-level clouds in-between, following Mason et al. (2014).

#### 3.4.1. Meteorological Profiles

Figure 3.3 and Figure 3.4 present the comparison of the observed and simulated (WRF, WRF\_np and WRF\_p) vertical profiles of T and RH<sub>i</sub> for the four flights F12 (A), F13 (B), F21 (C) and F29 (D). The measurements uncertainty is also reported. As expected, we do not notice a significant difference on T and RH<sub>i</sub> between the different simulations. The temperature profile is indeed not significantly affected by the modification of IWC due to a change in the ice nucleation parameterization. The observed temperature profile continuously decreases between 800 hPa and 400 hPa by ~30°C. The model underestimates the temperature for the four flights when the pressure is higher than 650 hPa with a bias lower than 2°C.



Figure 3.3: Comparison of the observed and simulated (WRF, WRF\_np and WRF\_p) vertical profiles of temperature (T) for the flights F12 (A), F13 (B), F21 (C) and F29 (D). The gap between the two dashed red lines the uncertainties  $(2\sigma)$  of ISDAC observations measurements.

The lowest temperatures at the top of the clouds are also well reproduced, except along F21 flight. For that flight, the three runs underestimate T by  $\sim 5^{\circ}$ C and RH<sub>i</sub> by  $\sim 40\%$  at the top of the cloud. The vertical profile of RH<sub>i</sub> is rather constant with height in the different simulations, whereas it is increasing in the observations. Although the mean value is very well represented along the four flights, the model is unable to represent the substantial enhancement of RH<sub>i</sub> with height by  $\sim 20-40\%$  between 800 and 400 hPa. The differences between the different runs in terms of RH<sub>i</sub> are the results of second-order feedbacks; a modification of the ice nucleation rate

will affect the total ice number concentration  $N_{T,i}$  but also the rate of crystal growth by riming or by condensation through the Wegener–Bergeron–Findeisen effect. Subsequently, the growing ice crystals consume water vapor faster than it is made available by the cooling of the air. Consequently, the supersaturation with respect to ice decreases in the model due to this process. The higher the IWC, the lower the RH<sub>i</sub>. Along the four flights, RH<sub>i</sub> is therefore lower in the WRF\_np simulation with higher IWC, than in the WRF\_p run with lower IWC.



Figure 3.4: Comparison of the observed and simulated (WRF, WRF\_np and WRF\_p) vertical relative humidity with respect to ice (RHi) for the flights F12 (A), F13 (B), F21 (C) and F29 (D). The gap between the two dashed red lines the uncertainties  $(2\sigma)$  of ISDAC observations measurements.

### 3.4.2. Spatial Structure of IWC in Large Scale Clouds

The vertical profiles of IWC obtained from the three simulations extracted along tracks T12 (A), T13 (B), T21 (C) and T29 (D) (Figure 3.1) are compared to those derived from the DARDAR

retrievals. The corresponding curtain plots are given in Figure 3.5 and Figure 3.6. The red rectangles represent the flight regions (Figure 3.1). Along tracks, DARDAR data show an IWC vertical profiles continuously decreasing from  $10^{-1}$  g/kg at 2 km to less than  $10^{-2}$  g/kg above 9 km. Comparisons shown in Figure 3.5 and Figure 3.6 indicate that the vertical structures of IWC are broadly captured by both WRF\_np and WRF\_p simulations at all vertical levels, with a RMSE lower than  $10^{-2}$  g/kg. WRF run systematically underestimates the IWC for mid- and low-level clouds with a low mean bias of  $-3.10^{-2}$  g/kg and may miss some clouds presenting low IWC values. On the contrary, WRF\_np run simulates clouds with larger IWC values than those obtained from WRF\_p (37% difference) and to a larger extent than from WRF-derived values (ratio close to 3).



Figure 3.5 : Observed DARDAR and simulated cross section of IWC from WRF, WRF\_np, WRF\_p simulations along T12 (A) and T13 (B) tracks. The red rectangles correspond to the whole area where the flights have been performed (Figure 3.1).

The curtain plot of IWC values extracted along T12 (Figure 3.5A) shows that the horizontal structure with two denser columns near 67°N and 70°N is well captured. The agreement is not as good for T13 (Figure 3.5B). In that case, the vertical cloud structure retrieved from satellite observations is more representative of two layers, except near the center of the domain (about 69°N) where a more homogeneous profile can be noticed on the vertical column, likely caused by precipitation.

Along T21 and T29 tracks (Figure 3.6A and 3.6B), WRF simulation (IWC~ $10^{-7}$ - $10^{-6}$  kg/kg) strongly underestimates DARDAR-derived IWC (IWC~ $10^{-5}$ - $10^{-4}$  kg/kg), as clouds are not even developed in the model, except below 4km for T21. WRF simulation is representative of a clear-sky situation between 66°N and 74°N for T29 as it fails to model clouds at all vertical levels. In all case studies, WRF run hardly represents low IWC values as horizontal structures evidenced by satellite retrieval are poorly reproduced.



Figure 3.6: Observed DARDAR and simulated cross section of the ice water content IWC from WRF, WRF\_np, WRF\_p simulations along T21 (A) and T29 (B) tracks. The red rectangles correspond to the whole area where the flights have been performed (Figure 3.1).
Along all tracks, WRF\_np and WRF\_p simulations better capture the IWC in high- and mid-level clouds (e.g., between 4 and 10 km, corresponding to temperatures below  $-25^{\circ}$ C) but underestimate it in low-level clouds, below 4 km with respect to DARDAR retrievals. The analysis reveals that the use of the CNT primary ice nucleation (WRF\_p and WRF\_np runs) clearly improves the representation of the IWC in the reference clouds. In addition, the difference on the simulated IWC using a parameterization with different contact angles ( $12^{\circ}$  and  $26^{\circ}$ ) (<0.5  $10^{-2}$  g/kg) is smaller than the discrepancy between the base WRF run and observations (low bias of ~-3.10<sup>-2</sup> g/kg).

# 3.4.3. IWC Profiles Along Flight Tracks

Comparison of the observed (both in situ measurements and DARDAR products) and simulated (WRF, WRF\_np and WRF\_p) local (ISDAC) and average (along DARDAR track) vertical profiles of IWC along F12 (A), F13 (B), F21 (C) and F29 (D) flights is presented in Figure 3.7. In addition to simulated local profiles extracted in the vicinity of in situ observations, Figure 3.7 also shows modeled and satellite-derived profiles averaged (labeled\_mean) along the satellite track (red rectangles in Figure 3.5 and Figure 3.6). For the sake of clarity, Figure 3.7 only presents the modeled average profile showing the best statistical score (Root mean square errors (RMSE), Relative error (RE)) according to results discussed in Section 3.4.2 at larger scale. Along F12 and F13 flights, the WRF\_np\_mean is therefore presented, whereas the WRF\_p\_mean profile is shown along F21 and F29 flights. The following figures (Figures 3.8B to 3.15B) will also use this convention. Significant differences between in situ and average DARDAR (DARDAR\_mean) profiles are found. They strongly depend on times and locations where clouds have been preferably sampled by in situ measurements.



Figure 3.7: Comparison of the observed and simulated (WRF, WRF\_np and WRF\_p) vertical profiles of IWC along the flights F12 (A), F13 (B), F21 (C) and F29 (D). Simulated profiles averaged along the satellite tracks (WRF\_p\_mean of WRF\_np\_mean) are reported together with DARDAR-retrieved average profiles (over the red domain of Figure 3.5 and Figure 3.6). The gap between the two dashed red lines represent the uncertainties ( $2\sigma$ ) of ISDAC observations measurements.

As expected from curtain plots shown in Figure 3.5 and Figure 3.6, WRF run does not predict any noticeable IWC for the F12 and F21 flights. IWC is strongly underestimated in the WRF simulation  $(-10^{-2} \text{ g/kg})$  along F13  $(-4.10^{-2} \text{ g/kg})$  and F29  $(-8.10^{-2} \text{ g/kg})$  flights at all vertical levels with respectively two and one orders of magnitude. This quantifies the poor performance of the base run of the WRF model in representing ice clouds with low IWC (about 0.01 g/kg or below) and shows the general underestimation of IWC of the base parameterization. In contrast to the base run (WRF), the WRF\_np and WRF\_p simulations significantly improve the simulated IWC for all flights except for F12 flight. Along this flight, IWC derived from the WRF\_p simulation remains much too low. Only the IWC predicted by the WRF\_np run turns out to be close to the observations at the cloud top (- 8.10<sup>-3</sup> g/kg), indicating an improved performance of the WRF\_np run in that "not polluted" air mass. Apart from that case, both WRF\_np and WRF\_p simulations give results within a factor of 2–5 at low IWC values, and a factor of 2 at large IWC values. The IWC is systematically predicted to be larger in the WRF\_np than in the WRF\_p simulation. A smaller contact angle in the WRF\_np run indeed tends to decrease the critical Gibbs free energy to form ice embryos (Equation 3.3), hence leads to a higher nucleation rate of ice crystals. This is in agreement with the larger IWC values found in the WRF\_np simulation and associated with a slightly lower RH<sub>i</sub>.

The averaged DARDAR profiles in the region of the flights (DARDAR\_mean profiles) are of the same order of magnitude as the in situ measurements. The agreement is especially good over the full range of altitudes for F21, above 4 km for F12 and below 4 km for F13. It is however strongly overestimated when the IWC obtained from airborne measurements is very low ( $< 10^{-3}$  g/kg below 4 km for F12 flight) and underestimated by 1-2 orders of magnitude when the IWC measured by in situ probes is larger ( $10^{-2}$ – $10^{-1}$  g/kg). Different times and locations between the aircraft and the satellites together with natural cloud variability might explain such discrepancies. In addition, Dong *et al.* (2010) note that generally DARDAR retrievals are thought to slightly overestimate in situ IWC measurements. Nevertheless, DARDAR\_mean profiles generally report the slight decrease of IWC from  $10^{-2}$  to  $10^{-1}$  g/kg with altitude in accordance with in situ observations. Given the challenge to faithfully evaluate IWC, the average vertical profiles (WRF\_np\_mean for F12 and WRF\_p\_mean for F21) show a good performance and both simulate DARDAR\_mean with a RMSE close to  $10^{-2}$  g/kg. The relative error is lower than 10% for F12 and lower than 40% for F21. The Pearson correlation for F12 is respectively (0.70) confidence interval (0.57;0.79), and F21correlation (0.85) confidence interval (0.78;0.90). Note

that, Fisher's z-transform (z) is used in the calculation of confidence intervals for Pearson's correlation coefficient, and to test the significance of differences between correlation coefficients. For F13 case, both the model and the satellite derived IWC follow the same vertical variability with a distinct minimum of approximately 10<sup>-3</sup> g/kg between 4.5 and 6 km. The corresponding Pearson correlation coefficient of WRF\_np\_mean versus DARDAR\_mean is (0.65) with confidence interval (0.48;0.77), yet the model underestimates the satellite profile by one order of magnitude. On the F29 case, the model does a good job in representing the in situ observations. But its performance is much worse when considering the comparison to the satellite product. Those different conclusions when comparing the model to different datasets highlight the difficulty to have a clear and coherent picture of the model performance. A relative error of 84% is found between WRF\_p\_mean and DARDAR\_mean and the simulation underestimates IWC by one order of magnitude at the top of the cloud, with very low IWC in the lower troposphere up to 650 hPa.

In summary, results at the local (in situ airborne measurements) and regional (remote sensing retrievals) scales both confirm the very large discrepancies between the outputs of the initial microphysical scheme of the WRF model and the measurements in the representation of the IWC in the Arctic. Building a parameterization based on the contact angle improves the vertical structure of ice clouds in terms of layering and IWC. Section 3.4.4 will further investigate the microphysical parameters of ice clouds in TIC-1 and TIC-2 clouds.

### 3.4.4. Microphysical Parameters of Ice Clouds

In this section, we examine the impacts of the various microphysical scheme in terms of their resulting number concentration (Ni) and ice crystal radius (Ri). The profiles derived from the different simulations are compared with airborne ISDAC campaign and DARDAR satellite data. Section 3.4.4.1 presents results when the sampled vertical profiles have been influenced by clean air masses (F12 and F13 case studies). Section 3.4.4.2 is devoted to the influence of polluted air masses (F21 and F29 case studies).

57

### 3.4.4.1. Clean Air Masses

Figure 3.8A and Figure 3.9A present the cross-sections of DARDAR-derived and simulated ice crystal number concentration (Ni) extracted along T12 and T13, respectively. Figure 3.8B and Figure 3.9B represent the vertical profiles of Ni simulated and measured during ISDAC F12 and F13 flights, respectively. Figure 3.8B and Figure 3.9B also include mean vertical profiles of Ni from DARDAR (DARDAR\_mean) and from WRF\_np (WRF\_np\_mean) averaged over the box between (65°N, 142°W) and (72°N, 162°W) area reported in Figure. 3.8A and Figure 3.9A. The DARDAR\_mean presents a the vertical profile with value around 200/L and 50/L on T12 and T13, respectively.



Figure 3.8: Observed and simulated (WRF, WRF\_np and WRF\_p) Ni along T12 track (A) and F12 flight (B). Simulated profile (WRF\_ np\_mean) averaged along the satellite track over the area of the flights (red rectangles on (A)) is also shown on (B) together with DARDAR-retrieved average profile. The gap between the two dashed red lines on (B) represent the uncertainties  $(2\sigma)$  of ISDAC observations measurements.

Although the simulations show some skill to represent the vertical cloud structure (Figure 3.8A and Figure 3.9A), large discrepancies exist on the quantitative values of Ni in large cloud systems. On T12 track (Figure 3.8A), WRF Ni is strongly underestimated at all vertical levels by three orders of magnitude. The skill of the WRF\_np and WRF\_p simulations improves significantly over the original WRF. WRF\_p reproduces the vertical structure of Ni relatively well, except in low-level clouds where it is often underestimated. WRF\_np shows an improvement of the representation of Ni in low-level clouds, but overestimates Ni values at higher altitudes by about a factor of 2. Along T13 track (Figure 3.9A), the performance of WRF\_np and WRF\_p simulations is rather good, but overestimating Ni of high-level clouds in regions near 53°N, 54°N, 67°N and 72°N. WRF run is characterized by a significant underestimation with a RMSE of 158 L<sup>-1</sup> at low level, and an overestimation in high level thin ice clouds between 63°N and 73°N. In the lowest layers, the best performance is given by the WRF\_np results with a RMSE of 114 L<sup>-1</sup>.

The airborne ISDAC vertical profile for F12 (Figure 3.8B) shows an average value of 150 L<sup>-1</sup> in broad agreement with the average DARDAR retrieval on T12 at altitudes below 6.4 km (pressures larger than 450 hPa). It is increasing to about  $10^3$  L<sup>-1</sup> within a 550 m thin layer (~ 50 hPa) at cloud top, but remains close to DARDAR on average in this layer. Whereas the WRF\_np profile averaged along the DARDAR track overestimates Ni by a factor of 5, the average WRF\_p profile underestimates it by about the same factor. When compared to ISDAC measurements averaged over the upper cloud layer (450–400 hPa), all schemes underestimate Ni except the WRF\_np scheme within a factor of 2, still smaller than the factor 10 to 50 observed for WRF and WRF\_p. In the layer below (between 450 and 550 hPa), all schemes underestimate Ni values within two orders of magnitude except for WRF\_np. Average WRF\_np results are overestimated by a factor of 2, but still remain better than the WRF\_p scheme results. The vertical microstructure of the cloud with Ni increasing from  $10^{-3}$  L<sup>-1</sup> at 2 km to  $10^3$  L<sup>-1</sup> at 6.4 km is therefore improved in the WRF\_np run.



Figure 3.9 : Observed and simulated (WRF, WRF\_np and WRF\_p) Ni along T13 track (A) and F13 flight (B). Simulated profile WRF\_np\_mean averaged along the satellite track over the area of the flights (red rectangles on (A)) is also shown on (B) together with DARDAR-retrieved average profile. The gap between the two dashed red lines on (B) represent the uncertainties ( $2\sigma$ ) of ISDAC observations measurements.

The observed vertical profile of Ni for the F13 ISDAC flight (Figure 3.9B) is ranges from 70 to 200 L<sup>-1</sup>. The average profile of DARDAR (DARDAR\_mean) presents a fair correlation with the ISDAC profile (R<sup>2</sup> ~0.45), even if a systematic weak underestimation is seen (mean bias of 37 L<sup>-1</sup>). The original WRF simulation strongly underestimates Ni by at least two orders of magnitude in the upper part of the cloud, above an altitude of 4 km (600 hPa). In contrast, the parameterization with WRF\_np run relatively overestimates Ni by a factor of 3 on average in this part of the cloud. WRF\_p simulation reproduces Ni relatively well at the cloud top, but remains within a factor 5 smaller on average. Under 4 km, WRF run does not predict any noticeable Ni and strongly underestimates observations by four orders of magnitude. WRF\_np and WRF\_p simulations underestimate Ni in this altitude range by two orders of magnitude, the best performance being given by WRF\_np. In comparison to DARDAR\_mean profile, the skill of the WRF\_np\_mean is rather good except in a thin layer between 500 and 550 hPa. This is mostly because the model properly represents two distinct cloud layers (Figure 3.9A), which cannot be discerned when observations are averaged in the vicinity of the flights.

Figure 3.10A and Figure 3.11A present the cross-sections of DARDAR-derived (Re) and simulated (mean radius of particles Ri) ice crystal size extracted along T12 and T13, respectively. Figure 3.10B and Figure 3.11B represent the vertical profiles of Ri obtained during ISDAC F12 and F13 flights, respectively, including average DARDAR (DARDAR\_mean) and WRF\_np\_mean profiles. Along T12 track, DARDAR predicts an effective radius continuously decreasing from 80 µm at 2 km to less than 50 µm above 9 km. WRF respectively strongly underestimates Ri by a factor 5 above 6.5 km and overestimates it under 6.5 km by a factor of 2. Using a contact angle of 12° leads to a reduced size of ice crystals. WRF\_p and WRF\_np indeed underestimate Ri with a RMSE of 20 and 25 µm, respectively. The average crystal size measured in situ is about 20-40 µm (Figure 3.10B). Along F12 flight, WRF and WRF\_p runs give Ri close to 0 through the whole cloud, in agreement with negligible IWC simulated in those runs (Figure 3.7A). In contrast, all values given by WRF\_np, WRF\_np\_mean, DARDAR\_mean and in situ observations are in better agreement. A very small mean bias of 7 µm is noticed between WRF\_np and the ISDAC profiles. The underestimation is a bit larger after a vertical integration

in the column between WRF\_np\_mean and DARDAR\_mean, but the performance of this parameterization can be considered as much improved given the high sensitivity of the variables.



Figure 3.10: Observed and simulated (WRF, WRF\_np and WRF\_p) Ri along T12 track (A) and F12 flight (B). Simulated profile WRF\_np\_mean averaged along the satellite track over the area of the flights (red rectangles on (A)) is also shown on (B) together with DARDAR-retrieved average profile. The gap between the two dashed red lines on (B) represent the uncertainties  $(2\sigma)$  of ISDAC observations measurements. Note that no clouds observed between 650 hPa and 700 hPa.

Despite an underestimation of the size of ice crystals along T13 track (Figure 3.11A), the discrepancies between the three simulations are not significant. The smallest error is given by WRF\_np with a RMSE of 44  $\mu$ m, followed by WRF\_p (RMSE of 54  $\mu$ m). The largest error is obtained with the standard version of the WRF model, reaching a RMSE of 57  $\mu$ m. Values extracted along F13 flight (Figure 3.11B) are somewhat larger than those along F12 flight (about 30-50  $\mu$ m). Overall, a much better performance is found with WRF\_np on F13 case in cloud layers above 4 km, (P <620 hPa) associated to clean air masses. Below this altitude level, there is an overestimation of Ri by a factor 2 in all simulations. It is linked to the underestimation of the WRF\_np\_mean profile with a RMSE close to 15  $\mu$ m. As a summary, the Ni is better represented in clouds under clean air influences when the WRF\_np run is used.



Figure 3.11: Observed and simulated (WRF, WRF\_np and WRF\_p) Ri along T13 track (A) and F13 flight (B). Simulated profile WRF\_np\_mean averaged along the satellite track over the area of the flights (red rectangles on (A)) is also shown on (B) together with DARDAR-retrieved average profile. The gap between the two dashed red lines on (B) represent the uncertainties  $(2\sigma)$  of ISDAC observations measurements.

3.4.4.2. Polluted Air Masses

Figure 3.12A and Figure 3.13A present the cross-sections of DARDAR-derived and simulated Ni extracted along T21 and T29, respectively. Figure 3.12B and Figure 3.13B represent the vertical profiles of Ni obtained during ISDAC F21 and F29 flights, and averaged over T21 and T29 tracks, respectively.



Figure 3.12: Observed and simulated (WRF, WRF\_np and WRF\_p) Ni along T21 track (A) and F21 flight (B). Simulated profile WRF\_p\_mean averaged along the satellite track over the area of the flights (red rectangles on (A)) is also shown on (B) together with DARDAR-retrieved average profile. The gap between the two dashed red lines on (B) represent the uncertainties  $(2\sigma)$  of ISDAC observations measurements.

All simulations demonstrate a skill to represent the structure of the presence of ice crystals in the atmospheric column (Figure 3.12A and Figure 3.13A). However, large discrepancies exist on the quantitative values of Ni in these two large cloud systems. On T21 and T29 tracks (Figure 3.12B, Figure 3.13B), WRF np largely overestimates Ni at all vertical levels, with a RMSE of 303 and 1057 L<sup>-1</sup>, respectively. In contrast, WRF simulation presents a strong underestimation of Ni for these two case studies: the RMSE is 100 and 165  $L^{-1}$  for T21 and T29, respectively. Only WRF p reproduces relatively well Ni over T21 (RMSE of 9  $L^{-1}$ ) and T29 (RMSE of 15  $L^{-1}$ ) tracks. The improvement from the WRF p parameterization with respect to observations is indeed essentially dependent on the contact angle  $\theta$ . When  $\theta$  increases from 12° to 26°, then  $\cos(\theta)$  decreases and  $f(\cos(\theta))$  increases. It follows that  $\Delta G^*$  increases, meaning that the energy barrier for nucleation becomes stronger and therefore difficult to reach. As a consequence, the nucleation rate J decreases and Ni decreases and becomes closer to observations. It should be noted that WRF p run does not detect a TIC-1 cloud at latitudes lower than 56°N, while this cloud is present in both WRF and WRF np simulations. This confirms the inability of the WRF p run and the rather good performance of the WRF np prescription to represent ice clouds in clean air masses (Sect. 3.4.4.1). According to Jouan et al. (2012), it is consistent with the fact that this southern region of the study domain is not affected by the polluted air mass in both F21 and F29 cases further North of Alaska. Satellite observations from the Ozone Monitoring Instrument (OMI) support that result by showing an increased concentration of SO<sub>2</sub> on 15 April (F21) and on 25 April (F29) over the North Slope of Alaska (Jouan et al. 2014). In this region under the influence of volcanic aerosols (polluted as opposed to clean air masses, i.e. without volcanic aerosols), the best agreement between model and observations is provided by the WRF p simulation (Figure 3.12A and 3.13A).



Figure 3.13: Observed and simulated (WRF, WRF\_np and WRF\_p) Ni along T29 track (A) and F29 flight (B). Simulated profile WRF\_p\_mean averaged along the satellite track over the area of the flights (red rectangles on (A)) is also shown on (B) together with DARDAR-retrieved average profile. The gap between the two dashed red lines on (B) represent the uncertainties  $(2\sigma)$  of ISDAC observations measurements.

Both TIC-2 clouds observed along F21 and F29 flight tracks are characterized by a small concentration of ice crystals varying between 1 and 30 L<sup>-1</sup> from cloud top to cloud base (Figure 3.12B and Figure 3.13B). The average profile derived from the spatial observations (DARDAR\_mean) is about a factor of 2 larger than Ni observed during the ISDAC on both F21 and F29 flights. WRF and WRF\_np runs respectively strongly underestimate and overestimate Ni by one to two orders of magnitude against in situ observations (Figure 3.12B and Figure 3.13B). Only WRF\_p, suitable for acid aerosol, simulates reasonably well Ni (within a factor of 2 on average) and produces the best statistics along F21 flight (Figure 3.12B). On Figure 3.13B, the WRF\_p simulation overestimates to a larger extent (factor 10) Ni detected from the F29 measurements. WRF-derived Ni are the closest to the observed values, indicating that the new parameterization, although generally improving the results, still need further investigation to better understand the sources of remaining discrepancies.

Figure 3.14 and Figure 3.15 present observed cross sections and vertical profiles of Re and Ri on April 15 and 25. Figure 3.14B and Figure 3.15B include the average DARDAR (DARDAR\_mean) and WRF\_p\_mean profiles. Along F21 flight, ISDAC profile shows a rapid growth of the ice crystal size at cloud top (~60  $\mu$ m) gradually increasing to about 100  $\mu$ m at cloud base. Those values are a factor of 2 larger than radii obtained along F12 and F13 flights. This F21 case refers to TIC-2 clouds characterized by a smaller number of larger ice crystals. An excellent agreement is found between DARDAR and ISDAC profiles. Along T21 track and F21 flight, all the simulations underestimate DARDAR and ISDAC observations in the range of uncertainty except WRF base run which does not represent the clouds at all vertical levels. This is caused by the corresponding large underestimation of IWC in the base WRF simulation (Figure 3.7C). Simulations based on a contact angle also underestimate observed crystal radii with a low bias of -42 and -28  $\mu$ m for WRF\_np and WRF\_p runs, respectively. The same result is obtained at large scale: WRF\_p\_mean underpredicts DARDAR\_mean Re values with a modest RMSE of 22  $\mu$ m for T21 case.



Figure 3.14: Observed and simulated (WRF, WRF\_np and WRF\_p) Ri along T21 track (A) and F21 flight (B). Simulated profile WRF\_p\_mean averaged along the satellite track over the area of the flights (red rectangles on (A)) is also shown on (B) together with DARDAR-retrieved average profile. The gap between the two dashed red lines on (B) represent the uncertainties  $(2\sigma)$  of ISDAC observations measurements.

Values of Ri are even larger along F29 flight. They indeed range from 90  $\mu$ m at cloud top to 170  $\mu$ m at cloud base. The WRF\_np simulation strongly underestimates observed in situ measurements with a mean bias of -69  $\mu$ m. A better agreement is found with the WRF run (bias of -29  $\mu$ m) and WRF\_p run (bias of -50  $\mu$ m), (Figure 2.15B). DARDAR vertical profiles give smaller values in the atmospheric column than ISDAC observations. The DARDAR\_mean profile present Re values from 50 to 90  $\mu$ m. A good agreement is obtained with the WRF\_p\_mean simulation (RMSE ~35  $\mu$ m). The comparison of the vertical profiles of Ri and Re retrieved along F21/F29 flights and T21/T29 tracks suggests that the best performance is obtained in the WRF\_p simulation, known to be more representative of air masses containing more acidic aerosols and therefore TIC-2 clouds.



Figure 3.15: Observed and simulated (WRF, WRF\_np and WRF\_p) Ri along T29 track (A) and F29 flight (B). Simulated profile WRF\_p\_mean averaged along the satellite track over the area of the flights (red rectangles on (A)) is also shown on (B) together with DARDAR-retrieved average profile. The gap between the two dashed red lines on (B) represent the uncertainties  $(2\sigma)$  of ISDAC observations measurements.

#### 3.5. Summary and conclusions

The objective of this study was to improve the heterogeneous ice nucleation parameterization in the Weather Research and Forecast (WRF) model. Several cases combining in situ measurements and remote sensing observations have been identified in clean and polluted situations to perform comparative modeling tests. Two types of ice clouds (TIC) have been distinguished, according to classifications based on extensive measurements from airborne campaign and satellite remote sensing in the Arctic during the polar night and early spring. TIC-1 clouds are composed by nonprecipitating very small (unseen by radar) ice crystals whereas TIC-2 clouds are characterized by a low concentration of large precipitating ice crystals. It is hypothesized that TIC-2 formation is linked to the acidification of aerosols, which inhibit the ice nucleating properties of IN. As a result, the INP concentration is reduced in these regions, resulting to a smaller concentration of larger ice crystals. In this work, we simulated cloud distributions and structures corresponding to four well documented case studies as references, obtained during ISDAC. The observed clouds were characterized by approximately the same order of magnitude of IWC ( $10^{-2}$  g/kg), but differed by the origin of air masses. Numerical simulations with a modified microphysical parametrization (WRF np in pristine air masses and WRF p in polluted environments) have been evaluated against in situ aircraft data and satellite remote sensed retrievals in the vicinity of the flights according to section 3.3. The main findings in this study are the following:

- 1. The original WRF model fails to simulate properly most ice clouds and is unable to distinguish clouds in the case of clean or polluted air masses, as compared to WRF\_np and WRF\_p parameterizations. IWC is strongly underestimated in the original WRF simulation along all flights at all vertical levels with several orders of magnitude. This underlines the poor performance of the base run of the WRF model in representing ice clouds with low IWC (about 0.01 g/kg or below).
- 2. The analysis also reveals that the use of the CNT primary ice nucleation (WRF\_p and WRF\_np runs) improves the representation of the IWC in Arctic thin ice clouds used as references. The difference on the simulated IWC using a parameterization with different contact angles (12° and 26°) is smaller than the discrepancy between the

75

base WRF run and observations. The results of the modifications in the microphysical scheme in terms of number concentration (Ni) and ice crystal radius (Ri) also show that the use of WRF\_np and WRF\_p simulations is improving the results both in TIC-1 and TIC-2 clouds, representative of clean and polluted air masses, respectively.

3. The WRF\_np simulation generally results in smaller ice crystals (Ri~10-80 μm) with larger concentrations (Ni~50-200 L<sup>-1</sup>). The cloud microstructure observed during flights in clean air masses corresponds to TIC-1 clouds characteristics, as aimed for. In TIC-1 case, ice deposition was the dominant nucleation due to an atmosphere not saturated with respect to liquid water. Compared to the original WRF base case, WRF\_np improves IWC by factor 2, Ni up to 1 order of magnitude and Ri by 40% in terms of bias. In contrast, the WRF\_np scheme does not represent the observed microstructure of ice clouds observed in polluted conditions (TIC-2 clouds). These results were expected since the WRF\_np scheme has been specifically developed to reproduce ice nucleation in a pristine environment.

On the other hand, the WRF\_p scheme can simulate small concentrations (Ni<40 L<sup>-1</sup>) of larger crystals (Ri~50-180  $\mu$ m). In the TIC-2 case, either immersion or condensation freezing of haze droplets (coated INP) was hypothesized, due to larger relative humidity with respect to ice, close to saturation with respect to liquid water. Low concentrations of INP combined to the high supersaturated air with respect to ice, lead to an explosive growth of ice crystals by water vapor diffusion (Keita et Girard 2016). Compared to the original WRF base, WRF\_p improves IWC by factor 4, and reduce Ni RMSE by 60% but increase Ri bias by 20%. Based on laboratory experiments (Eastwood *et al.* 2008; Eastwood *et al.* 2009), the WRF\_p run was parameterized to reproduce ice nucleation in polluted environments (TIC-2 clouds). We find that it corresponds relatively well to the microstructure of the ice clouds observed in air masses under the influence of volcanic plumes. These polluted cases were expected to lead to IN coated with sulfuric acid air masses conditions (Jouan *et al.* 2014). Inversely the WRF\_p simulations do not reproduce clouds

formed in a pristine environment (TIC-1 clouds). The deference was hypothesized to be closely related to the nucleation process (Girard et Blanchet 2001).

The new parameterization is nevertheless limited in space because it is tested for a fixed concentration of aerosols while, in a dynamic evolution, the concentration of aerosols varies in time, in space and with the acid concentration. A following study will account for variable aerosol such as over mineral dust (quartz, calcite, muscovite), soot, bioaerosols (bacteria, fungual spores, pollen) and acid concentrations in order to couple the microphysical scheme to a prognostic chemical module. The improved parameterization will therefore take into account the temporal and spatial variation of the aerosol concentrations and their degree of acidity using the proper contact angle. The new parameterization is also limited to the ice nucleation on dust particles only. Further work could consider heterogeneous ice nucleation on other types of particles, e.g., primary biological particles (bacteria, fungal spores and pollens). Taking into account the mixed composition of aerosols to develop specific parameterizations of ice nucleation specific parameterizations of ice nucleation could improve simulations of ice clouds where aerosol plumes of various types are observed.

# CHAPITRE IV : A NEW PARAMETERIZATION OF ICE HETEROGENEOUS NUCLEATION COUPLED TO AEROSOL CHEMISTRY IN WRF-CHEM MODEL VERSION 3.5.1: EVALUATION THROUGH ISDAC MEASUREMENTS

This chapter is presented in the format of a scientific article. It was published in 2020 in the Journal of Geoscientific Model Development. The design of the research and its performance together with the analysis of data and the redaction of this article are entirely based on my work, with the co-authors involved in the supervision of all these tasks.

Ce chapitre est présenté sous le format d'un article scientifique. Il a été publié en 2020 dans *Journal of Geoscientific Model Development*. La conception, la réalisation, l'analyse des données et la rédaction de cet article sont entièrement basées sur mon travail, les coauteurs ayant participés à la supervision de toutes ces tâches. Setigui Aboubacar KEITA<sup>1</sup>, Éric GIRARD<sup>1</sup>, Jean-Christophe RAUT<sup>1,2</sup>, Maud LERICHE<sup>1,3</sup>, Jean-Pierre BLANCHET<sup>1</sup>, Jacques PELON<sup>2</sup>, Tatsuo ONISHI<sup>2</sup>, Ana CIRISAN<sup>1</sup>

<sup>1</sup>ESCER Centre, Department of Earth and Atmospheric Sciences, Université du Québec à Montréal, H3C 3P8, Montréal, Québec, Canada

<sup>2</sup>LATMOS/IPSL, Sorbonne Université, UVSQ, CNRS, Paris, France

<sup>3</sup>Laboratoire d'Aérologie (LA), CNRS, Université Paul Sabatier, Toulouse, France

\*Corresponding author

Tel: +1 514-449-5099

Email: keita.setigui\_aboubacar@courrier.uqam.ca

### Abstract

In the Arctic, during polar night and early spring, ice clouds are separated into two leading types of ice clouds (TICs): (1) TIC1 clouds characterized by a large concentration of very small crystals and TIC2 clouds characterized by a low concentration of large ice crystals. Using a suitable parameterization of heterogeneous ice nucleation is essential for properly representing ice clouds in meteorological and climate models and subsequently understanding their interactions with aerosols and radiation. Here, we describe a new parameterization for ice crystal formation by heterogeneous nucleation in water-subsaturated conditions coupled to aerosol chemistry in the Weather Research and Forecasting model coupled with chemistry (WRF-Chem). The parameterization is implemented in the Milbrandt et Yau (2005a,b) two-moment cloud microphysics scheme, and we assess how the WRF-Chem model responds to the run-time interaction between chemistry and the new parameterization. Documented reference cases provided us with in situ data from the spring 2008 Indirect and Semi-Direct Aerosol Campaign (ISDAC) over Alaska. The analysis reveals that the new parameterization improves the representation of the ice water content (IWC) in polluted or unpolluted air masses and shows the low performance of the reference parameterization in representing ice clouds with low IWC. The new parameterization is able to represent TIC1 and TIC2 microphysical characteristics at the top of the clouds, where heterogenous ice nucleation is most likely occurring, even with the known bias of simulated aerosols by WRF-Chem over the Arctic.

Keywords: Arctic ice clouds, cloud microphysics, numerical modeling, WRF-Chem, classical nucleation theory, ice nuclei acidification

### 4.1. Introduction

The Arctic is warming faster than the global mean, and projections for the future suggest that this differential will continue (IPCC 2013). The contribution of aerosols to the changing climate of the Arctic is poorly known. Aerosols perturb the radiative balance directly by absorbing radiation and indirectly due to aerosol effects on cloud properties. This leads to increases in shortwave scattering efficiency and infrared radiation (IR) emissivity alterations of Arctic clouds (Shindell et Chin 2008; Zhao et Garrett 2015). The radiative properties and lifetime of clouds are particularly sensitive to aerosol concentration, composition and size (Taylor *et al.* 2000). While uncertainties associated with the indirect effects of aerosols on liquid clouds are still large, the effect of ice nucleation is even less well understood. Ice particle formation in tropospheric clouds significantly changes cloud microphysical properties, radiation balance and precipitation efficiency. At the core of the problem, ice nucleation causes multiple changes to cloud behavior, which at present are difficult to quantify. In its latest report, the IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change) was unable to estimate the radiative forcing of aerosols on clouds through ice nucleation (Boucher *et al.* 2013).

The detailed process of ice nucleation in cold clouds is complex and remains a major challenge for parameterization in atmospheric models. This is especially the case for polar ice clouds, for which the paucity of observations is a serious limitation (Curry *et al.* 1996; Kanji *et al.* 2017; McFarquhar *et al.* 2017). However, the strong coupling between clouds and state variables, particularly temperature and relative humidity, requires a dynamic coupling of the cloud microphysics interactively with the atmospheric state variables. Among these coupling processes, the efficiency of ice-nucleating particles (INPs) to activate cloud formation is critical given the rarity of INPs in the pristine atmosphere. Two approaches are used to treat the INP efficiency: a singular and deterministic method, or a stochastic method (Pruppacher et Klett 1997). While the singular approach assumes nucleation to occur at specific relative humidity and temperature (Murray *et al.* 2012; Wheeler et Bertram 2012), the stochastic or the classical nucleation theory (CNT) assume that freezing occurs at any location on the INP surface with equal probability (Pruppacher et Klett 1997; Cirisan *et al.* 2020). This can be considered as a first attempt to best

represent in situ observations, yet it is still not physically comprehensive. The ultimate method is still a matter of intense research (Wright et Petters 2013; Vali 2014).

Most atmospheric models use simple time-independent parameterizations of ice nucleation, predicting ice crystal number concentration either as a function of temperature (Fletcher 1962; Cooper 1986) or ice supersaturation (Meyers *et al.* 1991). These parameterizations do not include a limitation of ice crystal number concentration by the number of available ice nuclei particles and can lead to very poor estimation of ice crystal number concentration, in particular if they are applied outside the range of measurements used to constrain them (Prenni *et al.* 2007). This is particularly true for ice clouds in Arctic conditions (Keita et Girard 2016). In the CNT model, a crucial fitting parameter is the contact angle ( $\theta$ ), quantifying the wettability of a solid particle surface towards ice via the Young–Dupré equation. It is generally described as a single contact angle for an entire aerosol population, which does not work well for predicting the fractions of INPs on dust aerosol or on particles that have heterogeneous surfaces (Hoose et Möhler 2012).

In recent years, with increasing data on ice nucleation from field and laboratory studies, new time-independent parameterizations have been developed, often based on empirical fits to atmospheric INP measurements as a function of temperature and aerosol particle size distributions (DeMott *et al.* 2010b; Welti *et al.* 2012; Connolly *et al.* 2013; Phillips *et al.* 2013; Cirisan *et al.* 2020). Despite significant advances, they are of limited use in large-scale models operating over a wide range of temperatures. More complex CNT parameterizations than those using contact angle ( $\theta$  probability density function or PDF) come at high computational costs (Murray *et al.* 2012; Welti *et al.* 2012; Niedermeier *et al.* 2014). In the particular context of climate simulations in Arctic atmospheric and chemical conditions, there is a need for efficient parameterizations of heterogeneous ice nucleation using simplified approaches to limit computational time.

In Keita *et al.* (2019), the parameterization of Girard *et al.* (2013) for water-subsaturated conditions based upon the CNT approach was implemented in the online Weather Research and Forecasting model coupled with chemistry (WRF-Chem) (Grell *et al.* 2005). This

parameterization improves the representation of the formation of ice clouds in the Arctic in comparison to previous studies. It assumes that INPs are mainly mineral dust particles, which is consistent with recent results from the NETCARE<sup>7</sup> (Network on Climate and Aerosols: Addressing Key Uncertainties in Remote Canadian Environments) project (Abbatt et al. 2019). This parameterization considered physicochemical properties of INPs, which are important in Arctic conditions, especially during winter and early spring (Eastwood et al. 2009; Keita et Girard 2016) when sulfuric acid is often a dominant component of the aerosol, known as Arctic haze. Two types of ice clouds (TICs) were by characterized Grenier et al. (2009). A TIC1 is an ice cloud seen by lidar but unseen by radar and is composed of a relatively large number of nonprecipitating small ice crystals; its ice crystal number concentration is higher than  $10 L^{-1}$ . This cloud can have an upper part composed of low concentrated precipitating ice crystals. The second type, TIC2, is an ice cloud seen by both radar and lidar characterized by a low concentration of larger precipitating ice crystals with an ice crystal number concentration lower than  $10 L^{-1}$ . After spatial and temporal evaluation of the model, Keita *et al.* (2019) showed the ability of the parameterization to discriminate TIC1 and TIC2 clouds observed during the Indirect and Semi-Direct Aerosol Campaign (ISDAC) (McFarquhar et al. 2011). However, the study of Keita et al. (2019) was constrained by a prescribed concentration of aerosols with a fixed acid concentration.

In this paper, we investigate ice heterogeneous nucleation for the first time in a fully coupled aerosol and chemistry parameterization. We evaluate the dynamical response of the WRF-Chem model to the interaction between aerosols predicted by the chemistry module and the contact angle approach proposed by Girard *et al.* (2013). The new parameterization significantly improves the treatment of ice nucleation by discriminating TIC1 and TIC2 cloud formation as a function of the aerosol chemical composition. Each cloud is closely analyzed against observational data from three detailed flights conducted during ISDAC (2008). This study is part

<sup>&</sup>lt;sup>7</sup> NETwork on Climate and Aerosols ( www.netcare-project.ca )

of the NETCARE project addressing key uncertainties in remote Canadian environments with the objective of assessing the impact of aerosols on Arctic ice clouds.

The paper is organized as follows. Section 4.2 briefly describes the Milbrandt and Yau (2005a, b) scheme for cloud microphysics and the presentation of ice heterogeneous nucleation parameterization coupled with aerosol chemistry. Section 4.3 presents the test cases from ISDAC and Sect. 4 the evaluation of the new parameterization against ISDAC. Section 5.3 presents the conclusion.

## 4.2. Description of the new scheme for ice heterogeneous nucleation in WRF-Chem

The new scheme for ice crystal formation by heterogeneous nucleation in the deposition mode is implemented in WRF-Chem version 3.5.1. WRF-Chem is a regional, coupled "online" model (Grell *et al.* 2005), for which all prognostic meteorological, chemical and aerosol variables are integrated within WRF-ARW, a mesoscale meteorological model; it uses the same grid, time step, advection scheme and physics schemes as WRF-ARW. Several schemes are available in WRF-Chem for cloud microphysics. We choose the Milbrandt and Yau (2005a, b), MY05, for its ability to simulate some properties of Arctic clouds in previous works (Keita et Girard 2016; Keita *et al.* 2019).

4.2.1. Overview of the two-moment version of the cloud microphysical scheme MY05

MY05 (Milbrandt and Yau, 2005a, b) is a bulk cloud microphysics parameterization with one-, two- and three-moment versions. We use the two-moment version available in WRF-Chem. It includes the following prognostic variables: the mass mixing ratio  $q_x$  and the number concentration  $N_x$ , with  $x \in (c, r, i, s, h, g)$  respectively representing cloud liquid water (c), cloud ice water (i), rain (r), snow (s), hail (h) and graupel (g). The rate of the hydrometeor mass mixing ratio and number concentration are respectively governed by the following prognostic equations:

$$\frac{\partial q_x}{\partial t} = -\frac{1}{\rho} \nabla . \left(\rho q_x \boldsymbol{U}\right) + \nabla . \left(\boldsymbol{K} \nabla q_x\right) + \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial z} \left(\rho q_x V_{Qx}\right) + \frac{dq_x}{dt} |_s, \qquad (4.1)$$

and

$$\frac{\partial N_{T,x}}{\partial t} = -\nabla \left( N_{Tx} \boldsymbol{U} \right) + \nabla \left( \boldsymbol{K} \nabla q_x N_{T,x} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( \rho N_{T,x} V_{N,x} \right) + \frac{d N_{T,x}}{dt} |_s \quad , \quad (4.2)$$

where  $\rho$  is the density of air, **U** the 3D velocity vector,  $V_{Qx}$  the mass-weighted fall speed,  $N_{T,x}$  the total number concentration per unit volume,  $V_{Nx}$  the number-weighted fall speed and K the turbulent diffusion matrix. The right-hand side terms of both equations respectively represent advection and divergence, turbulent mixing, sedimentation, and microphysical tendencies (marked by the "s" subscript).

The mass of a single hydrometeor for the x category is parameterized as a power law of the form:

$$m_x(D) = c_x D^3 \quad , \tag{4.3}$$

where  $c_x = \rho_x \frac{\pi}{6}$ , with  $\rho_x$  the bulk density (Table 4.1) for spherical particles *x* (cloud liquid water, rain, snow, graupel and hail). Cloud ice crystals are assumed to be bullet rosettes (Ferrier 1994) with  $c_i$ =440 kg m<sup>-3</sup>. The size spectrum of each category is described by a common generalized gamma distribution function (Cohard et Pinty 2000) of the form:

$$N_{x}(D) = N_{T,x}(D) \frac{\nu_{x}}{\Gamma(1+\alpha_{x})} \lambda_{x}^{\nu_{x}(1+\alpha_{x})} D^{\nu_{x}(1+\alpha_{x})-1} \exp[(-\lambda_{x}D)^{\nu_{x}}] , \quad (4.4)$$

where  $N_x(D)$  is the number concentration of hydrometeor x per unit volume per unit diameter D,  $\alpha_x$  is the shape parameter controlling the size dispersion,  $\lambda_x$  is the slope and  $\nu_x$  is a second size dispersion parameter. The size distribution of cloud droplets is represented in MY05 by  $\alpha_x = 1$ and  $\nu_x = 3$ . For all other hydrometeors  $\nu_x = 1$  leading to the form:

$$N_x(D) = N_{0x} D^{\alpha_x} \exp[(-\lambda_x D)] , \qquad (4.5)$$

where  $N_{0x}$  is the intercept parameter given by

$$N_{0x} = N_{T,x}(D) \frac{1}{\Gamma(1+\alpha_x)} \lambda_x^{(1+\alpha_x)} .$$
(4.6)

Hydrometeor Bulk density (kg/m<sup>3</sup>)

Table 4.1: Bulk density for each hydrometeor category

Hydrometeor category

Cloud	1000	
Rain	1000	
Cloud ice	500	
Snow	100-500	
<u> </u>	400	
Graupel	400	
TT '1		
Hall	900	

The four ice-phase hydrometeors follow the size distribution above. The cloud ice water category represents pristine ice crystals. The snow category includes crystals with radii greater than 100  $\mu m$  and aggregates. The graupel category includes moderate-density graupel, formed from heavily rimed ice or snow. The hail category corresponds to high-density hail and frozen raindrops. For each ice-phase hydrometeor x, the total number concentration  $N_{T,x}$  ( $kg^{-1}$ ) and the mass mixing ratio  $q_{T,x}$  ( $kg.kg^{-1}$ ) are respectively given by:

$$N_{T,x} = \int_0^\infty N_{0x} D^{\alpha_x} \exp(-\lambda_x D) \, dD \,, \qquad (4.7)$$

and

$$q_{T,x} = \frac{1}{\rho} \int_0^\infty m_x(D) N_{0x} D^{\alpha_x} \exp(-\lambda_x D) \, dD \,, \tag{4.8}$$

where  $m_x(D)$  is obtained from Eq. (4.3).

Microphysical processes represented in MY05 are summarized in Table 4.3, where processes are listed according to the hydrometeor category.

Table 4.2: Source and sink terms listed according to the hydrometeor category, which gains mass and number, except for self-collections or evaporation.

Hydrometeor	Source and sink terms
Cloud	nucleation, condensation and evaporation, self-collection

Rain	autoconversion, evaporation, accretion	
	of cloud, self-collection, melting of	
	frozen hydrometeors	
Ice	nucleation (contact, deposition,	
	condensation freezing, rime	
	splintering, immersion, homogenous	
	freezing of cloud), riming of cloud,	
	deposition and sublimation	
Snow	conversion from ice (including ice	
	aggregation), collection of ice and	
	cloud, deposition/sublimation,	
	aggregation (self-collection),	
	collisional freezing with rain	
Graupel	collisional freezing of rain and ice-	
	snow-graupel, conversions from ice	
	and snow, collection of cloud and ice,	
	deposition and sublimation	
Hail	collisional freezing of rain and ice-	
	snow-graupel, collection of cloud-rain-	
	ice-snow, deposition and sublimation,	
	probabilistic freezing of rain,	
	conversion from graupel	

The source and sink terms for the two-moment (mass content) scheme are from previous (Ferrier 1994; Kong et Yau 1997; Cohard et Pinty 2000) and depend on the size distribution function. The primary sources of ice crystals in the atmosphere are heterogeneous and homogeneous ice nucleation. Homogeneous freezing is the spontaneous freezing of a water (or haze) droplet. According to Pruppacher et Klett (1997), the homogeneous freezing rate of cloud droplets is dominant at temperatures below  $\sim -32 \circ$ C. In the range  $-30 \text{ to } -50 \circ$ C, MY05 follows DeMott et al. (1994) with:

$$\Delta N_{freeze} = \int_0^\infty [1 - \exp(-JV\Delta t)] N_{Tc}(D) dD \quad .$$
(4.9)

In a given time step ( $\Delta t$ ),  $\Delta N_{freeze}$  is the number of droplets freezing homogeneously and *J* is the nucleation rate for pure water. For homogeneous nucleation,

$$log_{10}(J) = -606.3952 - 52.6611T_c - 1.7439T_c^2 - 2.65 \times 10^{-2}T_c^3 - 1.536 \times 10^{-4}T_c^4$$
(4.10)

with the volume *V* approximated by the mean-droplet diameter in units of centimeters. Therefore, the fraction of cloud droplets freezing in one time step may be written as:

$$F_{freeze} = \frac{\Delta N_{freeze}}{N_{Tc}} \left[ 1 - \exp\left(-J\frac{\pi}{6}D_{mc}^{3}\Delta t\right) \right] , \qquad (4.11)$$

where  $D_{mc}$  is the mean volume diameter of cloud droplets. Heterogeneous ice nucleation needs INPs, a minor fraction of the tropospheric aerosol. Their micro surface structures facilitate the formation of ice crystals. In the presence of INPs, if thermodynamic conditions are favorable, ice crystals can form by heterogeneous nucleation through four different modes. Deposition nucleation and condensation freezing can occur without the presence of supercooled droplets. For clouds below 0 °C primarily composed of supercooled liquid droplets, ice crystal can form by immersion and contact freezing. This conceptual definition of heterogeneous ice nucleation (Pruppacher et Klett 1997) is used in MY05. Contact freezing follows Young (1974) wherein the
number concentration of contact INPs is a function of temperature according to Meyers *et al.* (1991). In the contact-freezing formation mode, ice nucleation occurs on a solid particle colliding with a supercooled liquid droplet. Immersion freezing of raindrops and cloud water droplets follows the parameterization of Bigg (1953). The deposition mode involves the growth of ice directly from the vapor phase, whereas condensation freezing occurs if the ice phase is formed immediately after condensation of water vapor on a solid particle as liquid intermediate. In the original version of MY05, deposition and condensation freezing are functions of water vapor supersaturation with respect to ice,  $S_i$ , following Meyers *et al.* (1991):

$$N_{m,i}(S_i) = 1000 \exp\left[12.96(S_i - 1) - 0.639\right], \qquad (4.12)$$

where  $N_{m,i}$  is the number of ice crystals predicted per unit volume due to deposition and condensation-freezing. The Meyers *et al.* (1991) parameterization for deposition and condensation freezing depends only on supersaturation. It was derived from ground-based measurements. These approximations may lead to an overestimation of  $N_{m,i}$  when the number concentration of particles acting as INPs is low, such as in Arctic conditions (Eidhammer *et al.* 2009). Moreover, the immersion-freezing mode from Pruppacher et Klett (1997) has been extended to include freezing of imerged INPs inside an aqueous solution or wet aerosol (Vali *et al.* 2015), which is a significant process of Arctic ice cloud formation (Eastwood *et al.* 2009).

4.2.2. A new parameterization of ice heterogeneous nucleation coupled with chemistry for MY05 in WRF-Chem

The new parameterization focuses on heterogeneous ice nucleation for uncoated INPs and for sulfuric-acid-coated INPs in the deposition mode, i.e., in water-subsaturated conditions. In this approach, INPs are assumed to be mineral dust particles following Girard *et al.* (2013). For contact freezing and immersion freezing from supercooled cloud droplets, the parameterizations remain unchanged. As condensation freezing is uncertain (Vali *et al.* 2015), this process is no longer included in the model. The modified version of MY05 including the new parameterization described below is hereafter referred to as MYKE.

The parameterization is based on the CNT, a stochastic approach in which the nucleation rate  $(J_d)$  depends on the contact angle between an ice embryo and its INPs. Following CNT, in each time step ( $\Delta t$ ) the number concentration of nucleated ice crystals ( $N_t$ ) is given by:

$$N_f(\Delta t) = N_0 [1 - \exp\left(-J_d A_d \Delta t\right)] , \qquad (4.13)$$

where  $A_d$  is the total surface area of dust particles and  $N_t$  is the total number concentration of available INPs. In previous studies using this approach (Morisson *et al.* 2005; Chen *et al.* 2008; Khvorostyanov et Curry 2009; Hoose *et al.* 2010; Girard *et al.* 2013; Keita et Girard 2016; Keita *et al.* 2019),  $A_d$  and  $N_t$  were prescribed and constant over time, although the concentration of atmospheric INPs varied tremendously in time and space, as well as in their composition and origins. The new MYKE parameterization within WRF-chem now considers the temporal and spatial variation of  $A_d$  and  $N_t$ .  $J_d$ , the nucleation rate of embryos per unit surface of particles (Pruppacher and Klett, 1998; Martin, 2000; Hung et al., 2003; Parsons et al., 2004a; 2004b; Archuleta et al., 2005; Pant et al., 2006), is defined as:

$$J_d = Bexp\left(\frac{-\Delta G^*}{kT}\right) \quad , \tag{4.14}$$

where  $B=10^{26}$  cm-2s-1 is the kinetic coefficient (Pruppacher et Klett 1997), *k* is the Boltzmann constant (J K<sup>-1</sup>), *T* is the temperature in Kelvin, and  $\Delta G^*$  is the critical Gibbs free energy for the formation of an ice embryo (J) and is defined as:

$$\Delta G^* = \frac{16\pi \sigma_{iV}^3 f(\cos\theta)}{3\rho_i^2 R_v^2 T^2 ln^2 S_i} , \qquad (4.15)$$

where  $\sigma_{iv} = 106.5 \times 10^3 \text{ J.m}^{-2}$  is the surface tension between ice and water vapor,  $\rho_i = 0.5$ g.cm<sup>-3</sup> is the bulk ice density and  $R_v = 461.5 \text{ J.kg}^{-1}\text{K}^{-1}$  is the gas constant for water vapor. The function  $f(\cos \theta)$  is a monotonic decreasing function of the cosine of the contact angle  $\theta$  as defined (Pruppacher et Klett 1997) for a curved substrate:

$$f(\cos\theta) = \frac{1}{2} \left\{ 1 + \left(\frac{1-q\cos\theta}{\phi}\right)^3 + q^3 \left[ 2 - 3\left(\frac{q-\cos\theta}{\phi}\right) + \left(\frac{q-\cos\theta}{\phi}\right)^3 + 3q^2\cos\theta\left(\frac{q-\cos\theta}{\phi} - 1\right) \right] \right\},$$
(4.16)

where  $\emptyset = \sqrt{1 - 2 q \cos \theta + q^2}$  and  $q = \frac{r_n}{r_g}$  with  $r_g$  being the critical germ size expressed as:

$$r_g = \frac{2\nu_w \sigma_{iv}}{kT \ln(S_i)} \quad , \tag{4.17}$$

where  $v_w$  is the volume of a water molecule.

In the CNT, the contact angle  $\theta$  is a very important variable because it represents the ability of an INP to form ice. The lower the contact angle, the better an INP the aerosol is. Numerous laboratory studies have found realistic values of  $\theta$  based on the physicochemical composition of aerosols (e.g., Marcolli et al., 2007; Eastwood et al., 2008; Fornea et al., 2009; Welti et al., 2009; Kanji and Abbatt, 2010; Kulkarni and Dobbie, 2010; Luond et al., 2010). The CNT approach using these values was subsequently applied in climate and forecast models at different scales (Khvorostyanov et Curry, 2005; Morrison et al., 2005; Liu et Penner, 2005, Chen et al., 2008). For example, using the parameterization of Girard *et al.* (2013) based on laboratory studies from Eastwood et al. (2008, 2009), Keita *et al.* (2019) were able to simulate Arctic clouds forming in polluted and clean air masses with a prescribed contact angle of 26 and 12°, respectively. These studies were, however, limited because the contact angles represent extreme cases that must be prescribed arbitrarily before the simulation, and they assumed homogeneity of the degree of acidity of clouds in space and time throughout the whole domain.

For the first time, a real-time variable contact angle is used here in the CNT approach by coupling MY05 with the chemical module in WRF-Chem. This coupling is between MY05 and the MOSAIC (Model for Simulating Aerosol Interactions and Chemistry) aerosol module (Zaveri et al., 2008). MOSAIC simulates a wide variety of aerosol species: sulfates, methanesulfonate,

nitrate, chloride, carbonate, ammonium, sodium, calcium, black carbon (BC), primary organic mass (OC), liquid water and other inorganic mass (OIN). OIN represents unspecified inorganic species such as silica (SiO<sub>2</sub>), other inert minerals and trace metals lumped together. OIN is assimilated to mineral dust. MOSAIC uses a sectional approach to represent aerosol size distributions by dividing the size distribution for each species into several size bins (four or eight available in WRF-Chem) and assumes that the aerosols are internally mixed in each bin.

MOSAIC considers the major aerosol processes of inorganic aerosol thermodynamic equilibrium, binary aerosol nucleation, coagulation and condensation but does not include secondary organic aerosol (SOA) formation in the version used in this study. MOSAIC is a good compromise between accuracy and computing performance. It is used in WRF-Chem with four chemical mechanisms.

The coupling is done by expressing  $\theta$  as a function of the aerosol neutralization fraction  $f_n$  in dust particles internally mixed with sulfate, nitrate and ammonium (Zhang et al., 2007; Fisher et al., 2011), which is between 0 and 1 and is defined as:

$$f_n = \frac{[NH_4^+]}{2[SO_4^{2-}] + [NO_3^-]}$$
(4.18)

This was motivated by several previous studies (Jouan et al., 2012; Grenier and Blanchet, 2010; Demott et al., 2009; Blanchet and Girard, 1994; Curry and Herman, 1985; Keita and Girard, 2016; Keita et al., 2019) suggesting that the acidification of ice nuclei after the oxidation of sulfur dioxide forming sulfuric acid in the Arctic greatly alters the microphysical response of ice clouds. Such ice clouds tend to have bigger and fewer ice crystals than ice clouds formed in pristine environments. For instance, Kulkarni et Dobbie (2010) showed that, except for quartz, acidcoated dust makes less effective INPs in the deposition mode but has similar effectiveness in the immersion-freezing mode, i.e., in water-supersaturated regime. Based on X-ray diffraction analyses, they argued that acid treatment caused structural deformations of the surface dust, and the lack of structured order reduced the ice nucleation properties of coated particles in the deposition mode. Moreover, they suggested that, at water-supersaturated conditions, surface chemical reactions might not change the original ice-nucleating properties permanently because coating material could be removed by dissolution. Panda *et al.* (2010) concluded that sulfuricacid-treated kaolinite particles could result in the formation of aluminum sulfate that can easily be dissolved in water. Considering these recent findings and the objective to develop a simplified parameterization to limit computational time, we choose to use the CNT formula for deposition mode but with a specific factor, the neutralization fraction  $f_n$ , indicating the degree of acidity of the coating of dust particles.

Moreover,  $\theta$  has been derived by Eastwood *et al.* (2008, 2009) from heterogeneous nucleation rates on kaolinite particles obtained in laboratory measurements. As a best fit, they found limiting values of  $\theta$ =26° in polluted air and  $\theta$ =12° in clean air. Kaolinite represents a significant component of mineral dust (Glaccum et Prospero 1980). It is also found to be an efficient ice nucleus in the deposition mode, requiring relative humidity with respect to ice (RH<sub>i</sub>) below 112 % in order to initiate ice crystal formation (Eastwood *et al.* 2009). This is a typical microphysical condition found in Arctic ice clouds. Recent studies Kumar et al. (2018, 2019a, b) showed that

- 1. the relevance of quartz particles as atmospheric INPs is uncertain,
- 2. INP activity of dust particles not only depends on their composition but also on the history of their chemical exposure, and
- 3. the exposition of dust particles to acidic air masses decreases their INP activity.

Thus, using kaolinite as a proxy for dust particles in the new parameterization is reasonable in the current state of knowledge on dust particle composition in the atmosphere, in particular in the Arctic atmosphere where the new parameterization applies. Keita et Girard (2016), after analyzing the slope between the nucleation rate and the saturation over ice for TIC1 and TIC2 clouds (see Fig. 16 in Keita et Girard (2016), observed for a given  $S_i$  that

1. the slope is the largest for the smallest accessible contact angle, and

2. the decrease in the slope with the increasing contact angle is very nonlinear.

These results are consistent with laboratory experiments (Sullivan *et al.* 2010) showing a rapid increase in the contact angle with acidity on coated INPs. These results motivated us to parameterize the contact angle  $\theta$  as a function of the aerosol neutralization fraction  $f_n$  under a concave form. Simple concave functions follow the power law:

$$\theta = 26 - 14f_n^p \tag{4.19}$$

with *p* larger than 1. We have chosen a quadratic (p=2) form for simplicity:

$$\theta = 26 - 14f_n^2 \tag{4.20}$$

We have also added a sensitivity simulation under a biquadratic form (p=4) to test the influence of the exponent p on the concave form of the contact angle with the neutralization fraction:

$$\theta = 26 - 14f_n^4 \tag{4.21}$$

Both formulations, referred to as MYKE2 (Eq. 4.20) and MYKE4 (Eq. 4.21), are implemented in MY05 and tested hereafter. They imply that  $\theta$  is close to 26° for 0<  $f_n$  <0.5 with a more (Eq. 4.21) or less (Eq. 4.20) rapid decrease between 0.5 and 1 as shown in Fig. 4.1. The coupling between MY05 and MOSAIC is done by taking information from MOSAIC for  $A_d$  and  $N_t$  as needed to compute Eq. (4.13) and for  $f_n$  to compute Eqs. (4.20) and (4.21). These parameters are computed assuming the same aerosol size bin definition as in MOSAIC.



Figure 4.1 : Variation of the aerosol neutralization fraction  $f_n$  with the contact angle  $\theta$  for MYKE2 (blue line) and MYKE4 (green line)

# 4.3. Configuration of the model for typical TIC1 and TIC2 clouds observed during the ISDAC campaign

ISDAC took place during April 2008 at the North Slope of Alaska. The objective was to study the role of Arctic aerosols in cloud microphysical properties and in the surface energy budget. Numerous studies have been based upon data from ISDAC (McFarquhar *et al.* 2011; Lawson *et al.* 2019). Among them, several studies investigated detailed parameters of ice clouds by analyzing the ISDAC database (DeMott *et al.* 2010a; DeMott *et al.* 2010b; Jouan *et al.* 2012) or by running atmospheric models on case studies highlighted during the campaign (Keita and Girard, 2016; Matrosov et al., 2019; Keita et al., 2019). For instance, Keita *et al.* (2019) analyzed

microphysical properties of TICs for ISDAC flights in nonpolluted and polluted environment using WRF simulations. Flights F13, F21 and F29 studied by Keita *et al.* (2019) were typical of a TIC1 cloud (F13) formed in a pristine air mass and of two TIC2 representative cloud cases (F21 and F29) formed in a polluted air mass. Here, the goal is to show the potential of the new ice nucleation parameterization to discriminate TIC1 and TIC2 cloud formation as a function of the aerosol chemical composition. Each cloud type is closely investigated using detailed observations from three flights conducted during ISDAC.

The simulations with WRF-Chem including MYKE are done over the whole period of ISDAC (McFarquhar *et al.* 2011), from 1 to 30 April 2008, on the domain shown in Fig. 4.2, which is identical to that described by Keita *et al.* (2019). The three test cases (F13, F21 and F29) are included in this period. The domain is based on a Lambert projection centered on Fairbanks, Alaska, over  $160 \times 100$  grid cells with a horizontal resolution of 10 km and 55 vertical levels between the surface and 50 hPa. The first 4 days of the simulation (1 to 4 April included) are used for model spin-up. Three simulations are performed: the first one uses the original MY05 scheme (the REF simulation), the second one uses the new parameterization given in Eq. (20) (the MYKE2 simulation) and the third one uses the new parameterization described by Eq. (21) (the MYKE4 simulation). WRF-Chem options and parameterizations used in these simulations are summarized in Table 4.3. As in Keita *et al.* (2019), meteorological initial and boundary conditions use NCEP (National Centers for Environmental Prediction) Global Forecast System (GFS) Final Analysis (FNL) data (1°×1°), and the simulations are nudged to GFS FNL updated every 6 h above the planetary boundary layer (PBL).

Table 4.3: Parameterizations and options used for the WRF-Chem simulations.

Meteorological option

Selected option

RRTMG (Iacono et al. 2008)
RRTMG (Iacono et al. 2008)
KF-CuP (Berg et al. 2015)
MYJ (Janjic 1994)
Monin-Obukhov Janjic Eta scheme (Janjic 1994)
Unified Noah land-surface model (Chen et DUDHIA 2001)

Chemistry and aerosols options	Selected option
Gas-phase chemistry	CMB-Z (Zaveri et al. 2008)
Aerosols	MOSAIC 8-bin (Zaveri et al. 2008)
	+ VBS-2 SOA formation and aqueous chemistry



Figure 4.2 : Model domain (yellow) used in this study centered over Fairbanks with a horizontal resolution of 10 km. The cities of Barrow (now Utqiagvik:71.18,-156.44) and Fairbanks (64.83,-147.77) over wich the F12, F13, F21 and F29 flights took place are also shown with orange dots.

For the chemical module, the CBM-Z (Carbon Bond Mechanism) photochemical mechanism (Zaveri and Peters, 1999) coupled with MOSAIC is used. CBM-Z has 67 species and 164 reactions in a lumped structure approach that classifies organic compounds according to their internal bond types. Rates for photolytic reactions are derived using the Fast-J photolysis rate scheme (Wild et al., 2000). Eight size bins are used in MOSAIC. Chemical initial and

boundary conditions are taken from the global chemical-transport model MOZART-4 (Model for OZone And Related chemical Tracers, version 4) (Emmons et al. 2010). The fire emission inventory used is the Fire INventory from NCAR (FINN-v1) (Wiedinmyer et al. 2011). FINN-v1 provides emissions on a per fire basis based on event count information from the Moderate Resolution Imaging Spectrometer (MODIS). The anthropogenic emissions come from the inventory developed within the POLARCAT Model Intercomparison Model Project (POLMIP), which also includes SO<sub>2</sub> from both eruptive and noneruptive continuous degassing volcanism (Fisher et al. 2011; Jouan et al. 2014). During winter and spring 2008, sustained eruptive activity was recorded at Kamchatka and the Aleutian Islands (Fisher *et al.* 2011; Atkinson *et al.* 2013; Jouan et al. 2014). Noneruptive activity was common throughout the simulation period (Fisher et al. 2011; Atkinson et al. 2013; Jouan et al. 2014). Soil-derived (dust) and sea salt aerosol emissions are computed online into WRF-Chem respectively based upon the wind erosion formulation of Shaw et al. (2008) and the GOCART (Global Ozone Chemistry Aerosol Radiation and Transport model) sea salt emission module (Chin et Ginoux 2002). For biogenic emissions, the Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature (MEGAN) (Guenther, 2006) computes them online using characteristics of the surface (class of vegetation, soil humidity and temperature, for instance).

### 4.4. Results and discussion

This section presents comparisons of WRF-Chem simulations (REF, MYKE2 and MYKE4) against observations, followed by a discussion of the results. Although the comparison between simulated results and observations is presented in the following along the entire vertical profile inside the clouds, the discussion focuses on the altitudes above the 500 hPa level, where heterogeneous nucleation is the most important process (Kanji *et al.* 2017). According to Jouan *et al.* (2012), most of the differences between TIC1 and TIC2 events were confined at cloud top where ice nucleation mostly occurs and air is supersaturated with respect to ice. To compare simulations with observations along the ISDAC flight tracks, model results took in a grid box

of 10 km centered on the location of the flight. ISDAC in situ measurements have been averaged every 20 s, corresponding to a vertical resolution of ~45 hPa (~450 m), during ascents and descents through clouds. Simulated WRF outputs are linearly interpolated to the pressure levels of these observations and temporally averaged over a 3 h period, encompassing the area of ISDAC flights. Some statistics are computed using the same method. First, we present some meteorological and chemical properties, followed by an analysis of cloud microphysical properties.

#### 4.4.1. Temperature and relative humidity over ice

Table 4.4 presents biases (Bias), Pearson correlation coefficients (Cor) and root mean square errors (RMSE) for the temperature *T* and relative humidity over ice RH<sub>i</sub> for the three simulations (REF, MYKE2 and MYKE4) and above the 500 hPa level. According to Jouan *et al.* (2012), the uncertainties on the measurements are estimated at  $\pm 0.5$  °C for *T* and  $\pm 11$  % for RH<sub>i</sub>. Note that vertical profiles of *T* and RH<sub>i</sub> for flights F13, F21 and F29 are very close to results obtained by Keita *et al.* (2019). As expected, due to the nudging, the new heterogeneous ice nucleation parameterization does not significantly impact *T* and RH<sub>i</sub>. The lowest temperatures at the top of the clouds, where the process of heterogeneous ice nucleation is important, are relatively well reproduced by MYKE2 and MYKE4 simulations with similar statistics (Cor  $\approx 0.99$ , RMSE  $\approx 2$  °C, Bias  $\approx -2$  °C), except along F21 flight (Cor  $\approx 0.82$ , RMSE  $\approx 3.3$  °C, Bias  $\approx -3$  °C), for which the observed increase in temperature caused by the heat exchanged at cold temperatures is not adequately represented by the model. For that flight, the three simulations underestimate RH<sub>i</sub> by  $\pm 50$  % at the top of the cloud. These biases are consistent with the largescale GFS FLN fields and result in an underestimation of the altitude of the top of the cloud by the model for F21.

Table 4.4: Root mean square errors (RMSE), bias (Bias) and correlation coefficients (Cor) for the temperature (T) and relative humidity over ice (RH<sub>i</sub>) for the three simulations (REF, MYKE2 and MYKE4).

Flight	Variable	Simulation	RMSE	Bias	
			(°C)/(%)	(°C)/(%)	Cor
F13		REF	1.92	-1.90	0.99
	Т	MYKE2	1.76	-1.72	0.99
		MYKE4	1.77	1.73	0.99
		REF	10.86	8.55	0.95
	$RH_{i}$	MYKE2	17.74	15.58	-0.61
		MYKE4	17.08	14.88	-0.26
F21		REF	3.30	-3.00	0.82
	Т	MYKE2	3.31	3.02	0.82
		MYKE4	3.30	3.01	0.82
		REF	55.71	51.68	-0.06
	$RH_{i}$	MYKE2	56.02	52.28	-0.03
		MYKE4	55.84	51.93	-0.05
F29		REF	2.65	2.64	0.99
	Т	MYKE2	2.17	2.16	0.99
		MYKE4	2.19	2.18	0.99

	REF	11.86	11.37	0.67
RHi	MYKE2	16.67	16.31	0.65
	MYKE4	16.12	15.79	0.69

#### 4.4.2. Aerosol properties

Figure 4.3 shows the comparison between observed and simulated (REF, MYKE2 and MYKE4) vertical profiles of total aerosol number concentrations  $(N_a)$ . The Passive Cavity Aerosol Spectrometer Probe (PCASP) externally mounted under a wing of the Convair-580 aircraft sampled ambient clear air just before entering the cloud regions for all flights except F21. The optical particle counter (PCASP) provided particle size distributions and number concentrations in the geometric diameter size range  $0.12-3 \,\mu m$ . To allow a fair comparison between WRF-Chem-simulated and PCASP-measured  $N_a$ , the model concentrations are summed over bins 3 to 6, corresponding to sizes between 0.156 and 2.5 µm. According to Shantz et al. (2014), the uncertainty in number concentration measured by the PCASP is approximately 10 %. First, the model does not reproduce the observed vertical variability. This may be due to the small sampling domain and time taken during ISDAC, which make comparisons between model simulations and the observed variability difficult, especially at the low horizontal resolution of 10 km used here. For F13, the air mass is relatively clean, with a weak vertical variability of aerosol number concentrations remaining mostly below 210 cm<sup>-3</sup> on the whole column with mean concentrations around 73 cm<sup>-3</sup>, very close to the simulation mean of 86 cm<sup>-3</sup>. For F29, the PCASP shows that there is a much higher concentration of aerosol particles in the lower troposphere (more than twice that observed during F13, e.g., larger than 400 cm<sup>-3</sup>), particularly at altitudes above 550 hPa near cloud top where peak concentrations exceeding 1000 cm<sup>-3</sup> have been measured. Comparing the two flights, between 550 hPa and 400 hPa, the simulated aerosol number concentration is overestimated by a factor of 3 above observations for flight F13 and underestimated by 1 order magnitude for flight F29 (Fig. 4.3). These discrepancies are consistent

with Mölders *et al.* (2011),. By analyzing WRF-Chem predictions of aerosol concentrations during polar night around Fairbanks, they showed an overestimation of aerosol concentrations over a nonpolluted site and an underestimation at a polluted site. They concluded that discrepancies result from uncertainty in emissions, especially at Fairbanks. While most models agree that Arctic aerosols can be attributed to a mixture of anthropogenic sources, mesoscale models have difficulty properly simulating aerosol concentrations over the Arctic (Shindell et al., 2008;Eckhardt et al., 2015; Schwarz et al., 2013; Raut et al., 2017). Moreover, even if the simulated results show the same order of magnitude for  $N_a$  above 550 hPa (Fig. 4.3), whereas observations show a large difference between the two flights, we expect that the differences between simulated results for cloud microphysical properties for these two flights could be mainly explained by a combination of differences in the physicochemical properties of aerosols and the altitude of the simulated cloud top.



Figure 4.3 : Comparison of the observed (red) and simulated (green) WRF vertical profiles of total aerosol number concentrations. Observations were measured by the PCASP in situ sensor onboard the Convair-580 just before entering the clouds for flights F13 (solid lines) and F29 (solid lines with diamond markers). Note that PCASP measurements were not available during flight F21.

Figure 4.4 presents simulated (REF, MYKE2 and MYKE4) vertical profiles of sulfate (SO<sub>4</sub>), ammonium (NH<sub>4</sub>) and nitrate (NO<sub>3</sub>) molar aerosol concentrations along flights F13, F21 and F29, respectively. Unfortunately, no observation of the aerosol chemical composition was available during the campaign to evaluate those results. Vertical distributions indicate a rather constant structure of aerosol molar concentrations for F13, with a mean value around 6.2 nmol cm<sup>-3</sup> for both SO<sub>4</sub> and NH<sub>4</sub> and a value of 0.5 nmol cm<sup>-3</sup> for NO<sub>3</sub> (Fig. 4.4). For F21 and F29 simulated

results show peak aerosol concentrations in the mid-troposphere up to a factor of 2 compared to F13 and a larger vertical gradient, with large and moderate depletion in the boundary layer for F21 and F29 (Fig. 4.4 A and C). F21 and F29 have NH<sub>4</sub> mean values of 8 and 10.2 nmol cm<sup>-3</sup>, respectively, and SO<sub>4</sub> mean values both around 7 nmol cm<sup>-3</sup>. These values and the vertical structures correspond relatively well with mean observed concentrations for NH<sub>4</sub> and SO<sub>4</sub> of 7 nmol cm<sup>-3</sup> during the ARCTAS (Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites) and ARCPAC (Aerosol, Radiation, and Cloud Processes affecting Arctic Climate) campaigns in April 2008 (Fisher et al. 2011). Fisher et al. (2011) showed that volcanic sources (Aleutian Islands and Kamchatka) accounted for 12 %-24 % of the sulfate at all altitudes, with a peak contribution in the mid-troposphere. The volcanic source is discharged directly in the free troposphere and is thus less affected by deposition than surface sources. This is also supported by satellite observations from the Ozone Monitoring Instrument (OMI) over the North Slope of Alaska, which shows much larger SO<sub>2</sub> concentrations at the end of ISDAC. Clouds sampled during both F21 and F29 appear to form mostly in air masses containing dust and smoke, possibly with a highly acidic coating (Fisher *et al.* 2011; Atkinson et al. 2013; Jouan et al. 2014).



Figure 4.4 : Vertical profiles of sulfate (A), ammonium (B) and nitrate (C) molar aerosol concentration along flights F13 (green), F21 (red) and F29 (light blue).

Figure 4.5 presents the vertical profile of the neutralization fraction  $f_n$  (full line, see Eq. 18) and the contact angle  $\theta$  (dashed, see Eqs. 20 and 21) for MYKE2 (Fig. 4.5A) and for MYKE4 (Fig. 4.5B) along the top of the three flights F13, F21 and F29. Results obtained with MYKE2 and MYKE4 using the same value of the neutralization fraction are very similar. Results from the two simulations are therefore discussed together. The difference lies in the curve shape of the contact angle  $\theta$ : MYKE4 simulates a more rapid decrease for  $0 < f_n < 0.5$  than MYKE2 (Fig. 4.1). This prescription substantially increases  $\theta$  values in MYKE4 more than in MYKE2 along the vertical profile by up to 3°, especially at the cloud top where nucleation is the dominant process. This change has a positive impact on the nucleation rate: a smaller contact angle in the MYKE2 simulation indeed tends to decrease the critical Gibbs free energy to form ice embryos (Eq. 15), hence leading to a higher nucleation rate of ice crystals. The  $\theta$  profile in F13 presents a constant shape with values around 17.5 and 20.5° for MYKE2 and MYKE4, respectively. Focusing on MYKE4 for F21, the large contact angle around 21° corresponds to acid INPs, i.e., a smaller  $f_n$  than F13, and a decrease in the nucleation rate. Although F29 also shows significant acidity around 400 hPa (Fig. 4.4B), with higher concentrations of SO<sub>4</sub> than F13, it tends to neutrality around 500 hPa in relation to the increase in ammonium at this altitude in comparison to higher altitudes and the negligible amount of nitrate in the upper part of the cloud (Fig. 4.4B and C).



Figure 4.5 : Vertical profiles of the neutralization fraction ( $f_n$ , full line) and the contact angle ( $\theta$ , dashed line) for MYKE2 (A) and MYKE4 (B) along flights F13 (green), F21 (red) and F29 (light blue).

Results reveal that the model broadly reproduces  $N_a$  from the ground to the 500 hPa level, but it has difficulty representing  $N_a$  in the upper part, even if observations and model results remain of the same order of magnitude. MYKE2 and MYKE4 simulations show higher  $\theta$  values at cloud top for F21 and F29 in comparison to F13, thus differencing the acidic from the nonacidic cases as expected. In the following section, we will examine the effect of interactive chemistry on the cloud microphysical variables.

#### 4.4.3. Cloud microphysical structure

Details of the retrieval of cloud microphysical properties and associated uncertainties from the several cloud probes onboard the Convair-580 aircraft are given in Jouan et al. (2012). Figure 4.6 presents the comparison of the observed and simulated (REF, MYKE2 and MYKE4) vertical profiles of IWC (uncertainties:  $\pm 75$  %) along the three flights. Observed IWC vertical profiles for F13 and F29 continuously decrease between 800 and 400 hPa, with values in the range of  $10^{-1}$  to  $10^{-2}$  kg kg<sup>-1</sup>. For flight F21, observed IWC shows a large variability in its vertical structure. IWC values simulated by both MYKE2 and MYKE4 are very similar, with a slight improvement for MYKE2 simulating more IWC. This agrees with the  $\theta$  difference between MYKE2 and MYKE4 (Fig. 4.5). A smaller contact angle in the MYKE2 simulation tends to decrease the critical Gibbs free energy to form ice embryos (Eq. 15), hence leading to a higher nucleation rate of ice crystals and higher IWC. MYKE2 broadly capture observed values with a low bias of  $+1.2 \times 10^{-2}$  for F13,  $-3.2 \times 10^{-3}$  for F21 and  $-2.1 \times 10^{-3}$  for F29. MYKE4 also got a low bias:  $+8.1 \times 10^{-3}$  g kg<sup>-1</sup> for F13;  $-3.5 \times 10^{-3}$  g kg<sup>-1</sup> for F21, and  $-8.1 \times 10^{-3}$  g kg<sup>-1</sup> for F29. In contrast, REF strongly underestimates IWC values with a negative bias of 0.01 g kg<sup>-1</sup> for F13 and 0.03 g kg<sup>-1</sup> for F29. Note that REF does not have any noticeable IWC cloud at these levels in flight F21.



Figure 4.6 : Comparison of the observed (red) and simulated (REF in green, MYKE2 in purple and MYKE4 in cyan) vertical profiles of IWC along flights F13 (solid lines), F21 (dashed lines) and F29 (solid line with diamond markers).

Figure 4.7 presents a comparison between observed and simulated (REF, MYKE2 and MYKE4) vertical profiles of ice number concentration ( $N_i$ ) (uncertainties obseved: ±50 %) in the upper part of the cloud where heterogeneous ice nucleation processes are dominant above 500 hPa during flights F13, F21 and F29. The airborne ISDAC vertical profile for the TIC1 observed during F13 varies between 70 and 200 L<sup>-1</sup> and is rather constant with altitude. The REF simulation strongly underestimates  $N_i$  by 2 orders of magnitude, corresponding rather to a TIC2. MYKE2 and MYKE4 reproduce the observed  $N_i$  within the ranges of uncertainties well, while MYKE4 is slightly closer to observations with a bias of 5 L<sup>-1</sup>. The TIC2 cloud type observed along F21 and F29 flight tracks is characterized by a small concentration of ice crystals ranging between 1 and 30 L<sup>-1</sup>. For F21, while REF is not able to simulate a persistent cloud, both

MYKE2 and MYKE4 show a cloud with  $N_i$  close to observations typical of TIC2 under 450 hPa in the range of uncertainties (±50 %). As expected, due to the biases of temperature and relative humidity over ice, the model underestimates the cloud-top altitude for F21. For F29, both MYKE2 and MYKE4 show an increase in  $N_i$  compared to REF, which has the best statistics, while MYKE2 and MYKE4 simulations are overestimated by 1 order of magnitude. However, it is reasonably close to satellite observations as analyzed by Keita *et al.* (2019). Their analysis revealed a large discrepancy in  $N_i$  between ISDAC flights and satellite estimations for F29 in the upper part of the cloud. We can notice here that the order of magnitude of  $N_i$  for F29 estimated from satellites can call into question the classification of F29 as a TIC2, especially as Jouan *et al.* (2012), using a flight track above Barrow (now Utqiagvik) instead of Fairbanks, classified this cloud as a TIC1. This discrepancy between airborne measurements, simulated results and satellite observations can be due to the very high sampling resolution (10 m) along the ISDAC flight trajectory versus the lower sampling resolution of satellite (1.4 km) products and of the model grid resolution (10 km).



Figure 4.7 : Comparison of the observed (red) and simulated (REF in green, MYKE2 in purple and MYKE4 in cyan) vertical profiles of  $N_i$  along flights F13 (solid lines), F21 (dashed lines) and F29 (solid line with diamond markers).

Figure 4.8 presents the comparison of the observed and simulated (REF, MYKE2 and MYKE4) vertical profiles of the mean ice crystal radius ( $R_i$ ) with uncertainties of ±97 %) along the F13, F21 and F29 flights. Observations show that, although having the same IWC magnitude (Fig. 4.6), the TIC1 and TIC2 differ in their  $N_i$  (Fig. 4.7) and  $R_i$  values. Flight F13 (TIC1), with a large  $N_i$  concentration, has  $R_i$  values around 25 µm, while both F21 and F29 refer to TIC2 with a low  $N_i$  and  $R_i$  at least a factor of 2 larger. The INP acid coating in TIC2 inhibits the ice nuclei properties of the INPs, slowing the rate of ice nucleation in comparison to uncoated  $N_i$ .

Subsequently, this decrease in the nucleation rate increases the amount of available supersaturated water vapor and allows the rapid growth of activated ice crystals. It could explain the persistence of low  $N_i$  and the large  $R_i$ . For flight F13, MYKE2 and MYKE4 simulate the TIC1 formation above 450 hPa relatively well in the observation range, while below 450 hPa they both overestimate  $R_i$  by a factor of 2. For this TIC1 cloud, MYKE2 and MYKE4 give the smallest error in comparison to REF. For flight F21, MYKE2 and MYKE4 improve the comparison of simulated  $R_i$  against observations, showing large ice crystals even if the cloud-top altitude is underestimated. For flight F29, observed values of  $R_i$  are even larger. MYKE2 and MYKE4 show a little improvement in comparison to REF but only above around 450 hPa, with larger simulated ice crystals than REF. For flights F21 and F29, MYKE2 and MYKE4 underestimate the observed  $R_i$  by a factor of 2.



Figure 4.8 : Comparison of the observed (red) and simulated (REF in green, MYKE2 in purple and MYKE4 in cyan)  $R_i$  along flights F13 (solid lines), F21 (dashed lines) and F29 (solid line with diamond markers).

#### 4.4.4. Discussion

They analysis show the poor performance of the original REF parameterization in representing ice heterogeneous nucleation with low IWC and reveals that the MYKE parameterization does significantly improve the representation of the IWC at all vertical levels in polluted or unpolluted air masses. Along the three flights, RH<sub>i</sub> is lower in the MYKE2 and MYKE4 simulations than in the REF run at cloud top. This may be due to the new parameterization that favors ice nucleation through a reduction of the available supersaturated water vapor. The new parameterization, with the variation in time and space of  $A_d$  and  $N_t$ , better represents  $N_i$  and  $R_i$  values at the top of TICs for flights F13 and F21 where the nucleation occurs. The pronounced slope of observed  $R_i$  above the 500 hPa level in TIC2 cases (Fig. 4.8) indicates rapid growth of the ice crystals, which consume supersaturated water vapor faster than it is made available in the model. Finally, for flight F29, the new parameterization slightly improves  $R_i$  at the top of the clouds, while under around the 450 hPa level, simulated results show better agreement for the REF simulation. The reason for that is not clear. However, Fig. 4.5 shows a decrease in  $\theta$  with altitude between 450 and 500 hPa in connection with an increase in the ammonium molar concentration (Fig. 4.5B), which leads to a more efficient heterogeneous nucleation of ice at this altitude with smaller ice crystals and larger concentrations.

Finally, from the comparison of the three simulations, we can assess the ability of the new scheme to discriminate TIC1 and TIC2 clouds. For F13, while REF results in a TIC2 cloud, MYKE2 and MYKE4 simulations produce a TIC1 in agreement with observations. As shown before, the orders of magnitude of  $N_a$  at the top of the cloud for F13 and F29 are similar, but with the neutralization fraction  $f_n$  showing more acidic aerosols for F29. For both cases, close values of IWC allow us to compare MYKE results for  $N_i$  and  $R_i$ . Looking at the top of the cloud (above the 440 hPa level),  $N_i$  is lower for F29 than for F13 and  $R_i$  is larger for F29 than for F13, responding to acid aerosol through the variation of the contact angle. Within the limit of our calculation, the new parameterization significantly improves the representation of nucleation in TIC1 for F13 versus TIC2 for F29 at the cloud tops, despite the model bias of simulated aerosols by WRF-Chem over the Arctic (Mölders *et al.* 2011). The comparison between simulations of

F21 and F13 cases with MYKE is not so clear. Even if, at the top of the cloud,  $N_i$  is lower for F21 than for F13 as expected,  $R_i$  is smaller for F21 than for F13, which is not consistent with TICs. However, the comparison of the  $f_n$  fraction at the cloud tops shows similar values for F21 and F13 near acid neutrality. This result highlights the importance of a good simulation of aerosol physicochemical properties to create a valuable simulation of microphysical ice cloud properties with the new parameterization of heterogeneous ice nucleation.

In general, regarding overall simulated results, MYKE4 shows better agreement with observations than MYKE2 for TIC1 and TIC2 clouds. It is well known that the effect of acid coating on INPs is to reduce their ability to form ice crystals, and this effect increases with the amount of acid (Sullivan *et al.* 2010; Yang *et al.* 2011).

#### 4.5. Conclusion

A new parameterization of ice heterogeneous nucleation for water-subsaturated conditions, based upon the CNT approach and coupled with real-time chemistry information, is proposed within the WRF-Chem model. The coupling with chemistry helps to link the contact angle  $\theta$  to the aerosol neutralization fraction, which is a good proxy for the acidity of aerosols. This new parameterization is implemented in the Milbrandt and Yau (2005a, b) two-moment cloud microphysical scheme available in WRF-Chem. It is particularly designed to simulate Arctic ice clouds. In the Arctic, ice clouds are separated into two classes: (1) TIC1 clouds characterized by large concentrations of very small crystals and TIC2 clouds characterized by low concentrations of larger ice crystals. TIC2 clouds induce significant ice crystal precipitation or so-called diamond dust, a notoriously deficient variable to simulate in polar atmospheric models despite its significant contribution to annual snowfall that is generally reported as "trace" in station observations. The model including the original Milbrandt and Yau (2005a, b) scheme and the modified one are applied to three test cases observed during ISDAC: one TIC1 and two TIC2 clouds. For each case, results are analyzed in terms of meteorology, chemistry and cloud microphysical properties by comparison between the new (MYKE2 and MYKE4) and original (REF) parameterization of ice nucleation within the cloud microphysical scheme and with available observations.

The results show the poor performance of the REF parameterization in representing Arctic ice cloud types at low IWC and underline the fact that the MYKE2 and MYKE4 parameterizations significantly improve the representation of IWC, especially in the top region of the clouds where nucleation dominates, in both polluted and unpolluted air masses. MYKE2 and MYKE4 simulations are in better agreement with observations for the three flights. In contrast, REF always strongly underestimates IWC values with a negative bias and does not see any noticeable IWC cloud at these levels during flight F21.

Aerosol number concentrations are simulated with the same order of magnitude as observations under the 550 hPa level, whereas above the 550 hPa level, the simulated value is overestimated by a factor of 3 for flight F13 and underestimated by 1 order magnitude for flight F29. The new parameterization achieves the proper representation of cloud types TIC1 for flight F13 versus TIC2 for flights F21 and F29 in the nucleation region at cloud top. Values and vertical structures of ammonium and sulfate molar aerosol concentrations for flights F21 and F29 correspond fairly well to mean observed concentrations, i.e., 7 and 5.5 nmol cm<sup>-3</sup>, during the ARCTAS and ARCPAC campaigns, respectively, with known contributions from volcanic sources peaking in the mid-troposphere. MYKE2 and MYKE4 simulations are similar, showing higher  $\theta$  values at cloud top for flights F21 and F29 in comparison to flight F13, thus differencing the acidic from the nonacidic cases as expected, and a low sensitivity to the arbitrarily parameterized curve shape.

For the TIC1 case, REF strongly underestimates the ice crystal number concentration by at least 2 orders of magnitude and overestimates the mean radius, resulting in the false representation of an ice cloud corresponding rather to a TIC2. In contrast, the new parameterization captures the cloud type well, with representative microphysical structure (IWC, ice crystal mean radius and ice crystal number concentration) at the top of the cloud where nucleation occurs. TIC2 clouds

observed along the F21 and F29 flight tracks are characterized by a small concentration of ice crystals ranging between 1 and 30 L<sup>-1</sup>. MYKE2 and MYKE4 simulate those ice crystal number concentrations within the range of observation uncertainties. For flight F21, REF is not able to simulate a persistent cloud, while both the MYKE2 and MYKE4 simulations show a cloud with an ice crystal concentration close to observations. Corresponding values are typical of TIC2 cloud under the 450 hPa level even if the model underestimates the cloud-top altitude as a result of biases in the simulated temperature and relative humidity over ice. MYKE2 and MYKE4 also improve the ice crystal mean radius, showing larger ice crystals than REF. For flight F29, both MYKE2 and MYKE4 show an increase in the ice crystal concentration compared to REF, which has the best statistics, but the MYKE2 and MYKE4 results are still overestimated by 1 order of magnitude. MYKE2 and MYKE4 slightly improve the representation of the ice crystal mean radius in comparison to REF above the 450 hPa level, with larger simulated ice crystals than REF. For both TIC2 flights, MYKE2 and MYKE4 nevertheless underestimate the observed mean radius by a factor of 2. Comparing the two versions of the parameterization for the three cases, in general, MYKE4 presents a slight improvement compared to MYKE2, in agreement with  $\theta$  dependency. Because this difference is small, the dependency of the contact angle on the aerosol neutralization fraction under a concave form should be considered a sufficient condition to improve the representation of heterogeneous ice nucleation in Arctic ice clouds.

In this simulations, secondary organic aerosol (SOA) formation is not considered. However, the concentration of their precursor species, mainly biogenic and aromatic volatile organic compounds, should be low in the ISDAC region and period as suggested by the WRF-Chem simulation. However, results obtained later during the NETCARE campaign (2015) show a potential contribution of SOA to the total mass of Arctic aerosols, but their precursors are not yet identified in the Arctic, which is a new challenge in simulating their formation (Abbatt *et al.* 2019). Moreover, as the new parameterization is dedicated to the simulation of Arctic ice cloud types, we are confident that the combination of CBM-Z (*Carbon Bond Mechanism, version Z*, (Zaveri et Peters 1999)) and MOSAIC is appropriate even if CBM-Z is a relatively simple gasphase mechanism and if SOA formation is not considered. Indeed, the results suggest that it is

enough to consider the chemical impact on heterogeneous ice nucleation though the degree of aerosol acidity acting as INPs. Despite the huge challenge, the new parameterization seems promising. Further studies will help with validations against satellite data and future campaigns. In particular, future flight campaigns should include simultaneously measurements of cloud microphysics properties, aerosol number size distribution, aerosol chemical composition and ice nuclei number concentrations. The next step will be to extend simulations to quantify the role of the ice nucleation of acid pollution in radiation, the atmospheric water balance and, ultimately, the Arctic climate.

## CHAPITRE V : DISCUSSION SUR L'ANALYSE STATISTIQUE

Les Chapitre III et IV ont présenté une évaluation du modèle WRF et sa version avec la chimie WRF-Chem dans l'espace et dans le temps après avoir implémenté notre paramétrage basé sur l'approche stochastique appliquée à la simulation des nuages de glace en Arctique. L'influence de la prise en compte du nouveau paramétrage sur certaines propriétés macrophysiques et microphysiques des nuages glacés a été analysée. Ces analyses sont basées sur les résultats des calculs statistiques présentés dans des tableaux dans l'annexe A ainsi que sur les figures présentées dans les chapitres III et IV. Le modèle WRF dans le chapitre III (Tableau A1) et le modèle WRF-Chem dans le chapitre IV (Tableau A2) ont été évalués par rapport aux données in situ. L'erreur quadratique moyenne (RMSE), le biais, l'erreur relative moyenne (RE) et la corrélation de corrélation de Pearson y sont présentés.

En ce qui concerne RHi et T, nous avons fixé des seuils de significativité des différences. Lorsque ces seuils sont atteints, nous considérons que la différence entre les simulations WRF, MYKE2 et MYKE4 est significative. Ces résultats présentés dans les tableaux A1 et A2 indiquent que ces seuils n'ont pas été atteints. Pour RHi, le seuil pour les valeurs de RMSE et de biais était de 5%. Le maximum obtenu lors de la comparaison des simulations est respectivement de 4.44 et 4.39%. Le seuil de corrélation était de 0.97 et la plus faible corrélation obtenue est de 0.99 (0.97-0.99), l'intervalle de confiance étant calculé selon la transformation z' de Fisher (*Fisher's z-transformation test*). Pour la température, le seuil de RMSE et de biais était de 0.5°C et le maximum atteint est de 0.38°C. Le seuil de corrélation était de 0.97 et la plus faible corrélation obtenue est de 0.99 (0.99-1).

Dans ce chapitre, nous avons utilisé une définition alternative pour la distribution en taille des cristaux : le calcul du rayon moyen Ri suppose a priori une distribution monodispersée des cristaux alors que le schéma microphysique de Milbrandt and Yau (2005) a recours à une

distribution en taille Gamma. En rectifiant ce choix en terme du rayon effectif, un calcul simple montre que l'on devrait appliquer le facteur de correction suivant :  $R_e = 1.65R_i$  Dans ce cas, les écarts en Re entre les profils WRF\_np\_mean et DARDAR\_mean sont inférieurs à ceux que nous avions obtenus dans le chapitre III en comparant le rayon Ri de la simulation WRF\_np\_mean avec les observations satellitaires du profil moyen DARDAR\_mean. Cette amélioration des écarts est ainsi sensible sur les profils traces T12 (RMSE=12.78 µm et biais=-0.67 µm) et T21 (RMSE= 21.95 µm et biais= -15.25 µm). Dans le cas du profil T13, malgré l'amélioration sur l'ensemble du profil vertical moyen, nous obtenons tout de même une surestimation locale, entre 450 hPa et 550 hPa, si le rayon Re est considéré (RMSE= 40.10 µm et biais= -30.11 µm). Pour la trace T29 (RMSE= 11.74 µm et biais= -7.13 µm), une diminution des écarts est observée si l'on considère le rayon effectif en dessous de 550 hPa, là où les processus de nucléation de la glace sont dominants. Cependant, il y a surestimation du Re au-dessus de 550 hPa. Toutefois, nous estimons qu'une comparaison plus précise nécessite l'acquisition de données d'observation plus précises.

Une évaluation statistique des sorties du modèle WRF basée sur la RMSE et le biais été effectuée. Comme discuté dans les Chapitre III et IV, dans l'ensemble le nouveau paramétrage améliore la RMSE et le biais sur IWC, Ni et Ri pour les vols F12, F13 et F21. Dans le cas du vol F13, malgré l'amélioration de l'erreur RMSE de IWC par le nouveau paramétrage en dessous de 500 hPa, nous remarquons une détérioration de la RMSE sur le profil en entier du nuage. Dans le cas du vol F29, nous remarquons avec MYKE2 et MYKE4 une amélioration de IWC mais par contre une détérioration de Ni et Ri. Une évaluation statistique plus sophistiquée des sorties du modèle WRF pourrait être effectuée à l'aide de critères proposés par Emery *et al.* (2001) et de Boylan et Russell (2006). Cependant selon Seigneur *et al.* (2000), les critères de performance pour les statistiques de biais et d'erreur doivent être élaborés par un groupe de scientifiques expert dans le domaine des sciences de l'atmosphère.

Comme anticipé, la simulation WRF\_np donne généralement des cristaux de glace plus petits (Ri~10-80 µm) avec des concentrations plus importantes (Ni~50-200 L<sup>-1</sup>). La microstructure des nuages observée lors des vols dans des masses d'air pur correspond aux caractéristiques des

121

nuages TIC-1. Dans le cas de TIC-1, il a été proposé que le processus de nucléation dominant était la nucléation de la glace par déposition en raison d'une atmosphère non saturée en eau liquide. D'autre part, le schéma WRF\_p peut simuler de petites concentrations (Ni<40 L<sup>-1</sup>) de cristaux plus grands (Ri~50-180  $\mu$ m). Dans le cas de TIC-2, on a émis l'hypothèse d'une congélation par immersion ou par condensation des gouttelettes (INPs enrobés), en raison de l'humidité relative plus grande par rapport à la glace, proche de la saturation par rapport à l'eau liquide. De faibles concentrations de INP combinées à une forte sursaturation de l'air par rapport à la glace, conduisent à une croissance explosive des cristaux de glace par une forte diffusion de la vapeur d'eau (Keita et Girard 2016) de l'air ambiant vers les cristaux activés.

Les résultats comparés le long des traces du satellite DARDAR sur une région plus large (milliers de kilomètres) autour des vols ISDAC indiquent une amélioration de la représentation de la structure verticale des couches des TICs lorsqu'on utilise un paramétrage approprié. Ils indiquent également une amélioration de la représentation de certaines variables (Ni, IWC) lorsque ces variables sont comparées à fine échelle avec les profils verticaux ISDAC (données in-situ) de l'ordre de quelques kilomètres. Une confirmation de ces résultats à plus grande échelle mériterait une évaluation comparable sur toute la région arctique.

## **CHAPITRE VI : CONCLUSION ET PERSPECTIVES**

#### 6.1. Conclusion

Autour des années 1990, avec des observations faites grâce des milliers de sondages aérologiques effectués sur plus de quatre décennies, l'amplification de l'inversion de la température près de la surface durant l'hiver et au début du printemps en Arctique demeurait mal comprise (Kahl et Serreze 1992; Kahl et al. 1993). Par la suite, pour étudier les anomalies observées, une investigation minutieuse de l'effet des aérosols et plus précisément de l'effet des aérosols acides présents durant la brume arctique (« Arctic Haze ») sur les nuages de glaces a été entreprise (Blanchet et Girard 1994; Girard 1998). Une hypothèse sur l'oxydation du SO<sub>2</sub> et la production d'acide sulfurique provenant des moyennes latitudes qui désactivaient les propriétés des INPs avait été proposée. Les recherches étaient limitées par le peu d'observations dans cette région difficile d'accès. Le lancement des satellites CloudSat et CALIPSO dans le cadre de la mission A-TRAIN a permis à Grenier et Blanchet (2010) de caractériser deux types de nuages en Arctique qui diffèrent par leur microstructure. Les TIC-1 sont constitués de nombreux petits cristaux de glace en suspension dans l'air, visibles par le lidar mais invisibles au radar, alors que les TIC-2 sont détectés par ces 2 instruments. Ceux-ci se caractérisent par une faible concentration de gros cristaux de glace et sont précipitants avec un effet de déshydratation sur l'atmosphère. Ce travail a permis à Grenier et Blanchet (2010) d'établir une corrélation entre les concentrations d'acide sulfurique et la présence des TIC-2. La confirmation du changement des caractéristiques des nuages arctiques associés aux émissions de SO<sub>2</sub> à la fine échelle a été faite grâce à l'étude de Jouan et al. (2012) à partir des données d'observations in-situ durant la campagne de mesure ISDAC réalisée en 2008. Une investigation sur l'origine des masses d'air polluées a également été menée pour identifier les sources volcaniques du SO<sub>2</sub> et des aérosols.

Conscient de l'effet potentiel des nuages formés dans les masses d'air polluées sur le bilan énergétique de l'atmosphère et sur le climat arctique ainsi que de l'inadéquation des paramétrages de la nucléation des nuages froids en Arctique, cette thèse contribue au développement d'un paramétrage de la nucléation hétérogène des cristaux de glace dans un schéma de microphysique à double moment, celui de Milbrandt et Yau (2005b). Ainsi, l'objectif était d'améliorer les simulations des nuages de glace à partir d'un volume limité d'observations in-situ obtenu durant ces dernières années de recherche en Arctique. L'originalité du schéma final développé, appelé MYKE, réside dans l'approche couplée de la nucléation hétérogène de la glace avec la chimie de l'atmosphère, et en particulier celle des aérosols. Ce schéma de microphysique des nuages couplés aux aérosols permet de prendre en compte la variation spatiale (horizontale et verticale) et temporelle des propriétés granulométriques et physicochimiques des INPs présents dans le domaine de simulation.

Le chapitre III présente l'implémentation du paramétrage dans le modèle tridimensionnel WRF largement utilisé par la communauté scientifique. Dans cette première étape, l'angle de contact, qui conditionne l'efficacité de la nucléation des INPs dans l'approche utilisant la théorie classique de la nucléation (ou CNT), est fixé et peut prendre les deux valeurs extrêmes proposées par Eastwood et al. (2008; 2009). Ces deux valeurs sont de 12° pour les masses d'air non polluées et de 26° pour les cas pollués. D'une part, le modèle intégrant le paramétrage a été évalué avec quatre cas d'étude identifiés pendant ISDAC, soit deux TIC1 et deux TIC2. D'autre part, à cause du caractère ponctuel des observations in-situ comme celles d'ISDAC, le modèle a également été comparé aux données à la grande échelle provenant d'analyses DARDAR, ce qui a permis d'avoir à la fois une représentation spatiale et temporelle des TICs à l'échelle régionale. Le résultat le plus marquant de ce premier travail fut de constater que le modèle WRF avec le schéma original pour la nucléation de la glace, c'est-à-dire le paramétrage de Meyers et al. (1991), ne parvenait pas à simuler correctement la plupart des nuages de glace observés contrairement au paramétrage utilisant la valeur appropriée de l'angle de contact suivant la masse d'air dans laquelle le nuage s'était formé. Cette insuffisance constatée pour le paramétrage de Meyers et al. (1991) était attendue, puisque le nombre de cristaux formés ne dépend que de la

sursaturation par rapport à la glace. Ceci a provoqué dans notre cas une sous-estimation de plusieurs ordres de grandeur du contenu intégré en glace (IWC) dans tous les nuages échantillonnés par l'avion de recherche, et une surestimation du nombre de cristaux formés (Ni) lorsque la concentration en nombre de particules agissant comme INPs était faible. Ces résultats ont montré que l'approche stochastique basée sur la théorie classique de la nucléation, avec l'angle de contact approprié, est meilleure que le schéma originel du modèle WRF pour représenter les propriétés TIC-1 et TIC-2 (concentration et taille des cristaux de glace) en réponse à l'acidification des INPs. Sous cette version, le paramétrage était néanmoins limité. Tout d'abord parce qu'il a été testé avec une concentration fixe d'aérosols alors que dans une évolution dynamique, la concentration des aérosols varie temporellement et spatialement. D'autre part, parce que les angles de contact représentent des cas extrêmes qui doivent être prescrits suivant l'identification du type de masse d'air faite au préalable avant la simulation. Et enfin parce qu'il suppose l'homogénéité du degré d'acidité des nuages dans l'espace et dans le temps sur l'ensemble du domaine.

Le chapitre IV présente l'implémentation du paramétrage de nucléation hétérogène de la glace couplé avec la chimie des aérosols dans le même modèle tridimensionnel incluant la chimie atmosphérique, WRF-Chem, et l'application du modèle à trois cas d'étude issus de la campagne ISDAC : un cas de TIC-1 (non pollué) et deux de TIC-2 (pollués). Pour la première fois, un angle de contact variable dans le temps a été utilisé dans l'approche CNT en couplant le module de microphysique de Milbrandt et Yau (2005b) avec le module chimique de WRF-Chem. Ce couplage s'est fait avec le module aérosol MOSAIC (Model for Simulating Aerosol Interactions and Chemistry) (Zaveri *et al.* 2008). MYKE prend en compte les concentrations et le degré d'acidité variables des aérosols provenant de MOSAIC. MOSAIC simule une grande variété d'espèces d'aérosols : sulfate, méthanesulfonate, nitrate, chlorure, carbonate, ammonium, sodium, calcium, carbone suie (BC), matière organique primaire (OC), eau liquide, et matière inorganique restante (OIN), qui représente principalement les poussières terrigènes. La nucléation de la glace se fait dans ce nouveau schéma à partir du nombre de poussières minérales (dust) fourni par le module de la composition chimique. L'acidité des INPs est estimée grâce au calcul du facteur de
neutralité, f, et à une relation de dépendance entre l'angle de contact et ce facteur f. Cette relation impose une variation de l'angle de contact entre 12° et 26°, les valeurs extrêmes déterminées par (Eastwood et al. 2008; Eastwood et al. 2009). La formulation de cette relation provient des résultats d'analyse de la pente entre le taux de nucléation et la saturation par rapport à la glace pour différentes valeurs de l'angle de contact (Keita et Girard 2016). Ces résultats sont en accord avec les expériences en laboratoire de Sullivan *et al.* (2010) et ils indiquent que : (1) la pente est la plus grande pour les plus petits angles de contact ; (2) la diminution de la pente avec l'augmentation de l'angle de contact est abrupte. Ce dernier point confirme l'augmentation rapide de l'angle de contact avec le degré d'acidité des INPs. Ainsi, l'angle de contact  $\theta$  (en degrés) est fonction du facteur f sous une forme quadratique (MYKE2) ou biquadratique (MYKE4), toutes deux implémentées dans le modèle WRF-Chem. Pour les deux vols ISDAC pour lesquelles des données de concentrations en nombre d'aérosols sont disponibles, même si le modèle représente bien les concentrations d'aérosols au-dessus de 550 hPa, il a de la difficulté à représenter les concentrations d'aérosols en dessous du niveau 550 hPa. Cette difficulté de représentation par le modèle WRF-Chem de la concentration en nombre des aérosols n'est pas isolée dans la région arctique à cause de facteurs limitants, dont la sous-estimation des sources de sulfates dans l'inventaire des émissions disponibles et le traitement complexe du lessivage des aérosols dans le modèle (Eckhardt et al. 2015). Une autre difficulté a été de valider les concentrations molaires simulées d'aérosols d'ammonium, de nitrate et de sulfate, essentielles pour l'évaluation du degré d'acidité. Ces données d'observations n'étant pas disponibles durant ISDAC, les concentrations molaires simulées ont été comparées aux concentrations moyennes observées pendant les campagnes ARCTAS et ARCPAC. Les valeurs et les structures verticales des concentrations molaires d'aérosols d'ammonium et de sulfate pour les vols dans l'air pollué (TIC-2 observés) correspondent relativement bien aux concentrations moyennes observées durant ces campagnes de mesures. Les simulations MYKE2 et MYKE4 donnent des résultats très similaires avec des valeurs plus élevées de  $\theta$  au sommet des nuages pour les vols caractérisant des masses d'air polluées par rapport au vol ayant échantillonné une masse d'air non polluée, caractérisant les cas d'aérosols acides et non acides.

Notons que ces simulations ne visent pas les effets climatiques, car les perturbations de température découlant de la modification des propriétés nuageuses et du rayonnement sont estompées par un guidage dynamique du modèle en chaque point de grille, selon l'approche appelé « Analysis Nudging » sauf dans la couche limite atmosphérique. Les variables météorologiques, et en particulier la température, sont en effet contraintes par une relaxation (avec une constante de temps de l'ordre d'une heure) appliquée aux analyses GFS-FNL opérationnelles de pilotage. Même si les champs météorologiques à l'échelle synoptique provenant des réanalyses ne sont mis chaque jour que toutes les 6h, le guidage du modèle s'applique à chaque pas de temps dynamique et ramène, en tout point de grille, le modèle vers les réanalyses de référence. Cela explique que toutes les simulations donnent des profils météorologiques, en particulier de température, à peu près similaires. On ne peut donc pas conclure sur l'effet climatique probable des rétroactions des TICs sur la dynamique de l'atmosphère, l'objectif de cette recherche étant limité au développement d'un paramétrage de la microphysique. D'autres limites, inhérentes aux systèmes complexes des processus microphysiques, ont été rencontrées durant cette étude. En particulier, dans un des cas pollués, la sous-estimation du sommet du nuage par le modèle peut être liée à une mauvaise représentation des variables météorologiques à l'échelle synoptique issues des réanalyses GFS-FNL. Une autre cause possible pour expliquer l'atténuation de l'effet de MYKE sur la température est reliée à la compensation entre le refroidissement de l'air dû à la perturbation du rayonnement thermique IR et le réchauffement compensatoire causé par l'intensité du rayonnement solaire à cette période de l'année (printemps), sous un ensoleillement permanent.

Malgré ces limites, le nouveau paramétrage permet de mieux représenter les caractéristiques microphysiques des TIC-1 et TIC-2 au sommet des nuages, là où la nucléation hétérogène de la glace est le processus de formation dominant, malgré un biais important dans les concentrations en nombre d'aérosols simulées par WRF-Chem. Plus profondément dans un nuage, le modèle est limité à cause de la difficulté croissante à représenter l'évolution des INPs. La présence d'autres processus microphysiques interagissant dans les couches profondés du nuage comme ceux liés à la croissance (agglomération, agrégation, givrage, sédimentation) rendent l'application du

paramétrage contraint et l'interprétation des résultats plus difficiles. Les différents cas étudiés ont mis en évidence la complexité des interactions et des effets des aérosols sur la structure nuageuse, notamment en raison des couplages entre ces processus microphysiques et la dynamique de l'atmosphère. Néanmoins, MYKE est un paramétrage qui pourrait aider sans doute à la construction d'un outil de modélisation fiable qui servirait à simuler le climat arctique et global pour différents scenarios de changements climatiques.

## 6.2. Perspectives : étude climatique des TICs en Arctique

L'impact radiatif des gaz à effet de serre à l'origine du réchauffement climatique est connu pour différents scénarios d'émission possibles, mais il n'en est pas de même pour celui des aérosols. Dans ce cas, l'incertitude la plus grande porte sur leurs effets indirects entre les nuages, les précipitations et le rayonnement, notamment via leur interaction avec les nuages glacés dont l'émissivité est particulièrement sensible à la microphysique. Pour mieux comprendre cet effet lié aux nuages glacés, en particulier en Arctique, il est nécessaire de produire des simulations longues avec un modèle climatique régional intégrant le nouveau paramétrage de la nucléation hétérogène des cristaux, adapté aux nuages arctiques de type TIC-1 et TIC-2 (MYKE). Le modèle canadien GEM-MACH (Coté *et al.* 1998; Moran *et al.* 2010)<sup>8</sup> est un modèle climatique régional intégrant la chimie atmosphérique qui est un bon candidat pour implémenter MYKE. En effet, les aérosols y sont représentés avec une approche sectionnelle similaire à celle de WRF-Chem et il intègre le même schéma microphysique que celui dans lequel MYKE a été implémenté dans WRF-Chem. Nous pouvons dès lors envisager une autre étape de la recherche vers une résolution de cette question.

<sup>&</sup>lt;sup>8</sup> Disponible sur : https://github.com/mfvalin?tab=repositories, dernier accès : 10 novembre 2019

Dans un premier temps, pour une étude de sensibilité, GEM-MACH intégrant MYKE serait appliqué durant l'hiver et le printemps, c'est-à-dire la période de la brume arctique (« Arctic Haze »), sur une année donnée pendant laquelle un maximum de données DARDAR est disponible. Les résultats de cette simulation seraient alors comparés à DARDAR à l'aide d'analyses statistiques. Pour appuyer la pertinence de cette méthodologie, les Figures B1 à B6 de l'annexe B montrent une comparaison entre les résultats obtenus par WRF-Chem avec MYKE sur les 4 cas issus de ISDAC étudiés dans la première partie avec les observations satellitaires DARDAR. Dans ces nouvelles figures les résultats de WRF np er WRF p ont été remplacé par MYKE2 et MYKE4. Cette comparaison montre une grande amélioration de la représentation des TIC-1 et TIC-2 avec MYKE comparativement au schéma microphysique d'origine. Dans un deuxième temps, GEM-MACH serait appliqué sur l'Arctique sur plusieurs années avec une attention particulière portée à l'effet climatique des TIC-2, en particulier de ceux dont la formation est associée aux masses d'air acides. Cela nécessiterait de caractériser les propriétés macro-physiques, c'est-à-dire les localisations, la fréquence d'occurrence et la variabilité spatiotemporelle en INPs et en R<sub>i</sub> des différents TICs à partir des données DARDAR. Il faudrait aussi estimer la charge en aérosols des masses d'air et identifier les régions privilégiées d'alimentation en pollution anthropique à partir des observations et des ré-analyses disponibles. Après confrontation des résultats simulés aux données d'observation et de ré-analyse, l'impact radiatif de nuages de glace optiquement minces sur l'ensemble du climat arctique pourrait être estimé. Il faudrait envisager deux scénarios proposés par Girard et al. (2013). Dans le premier scénario, MYKE serait activé en supposant que les particules de poussières de concentration variable prises en compte pour la nucléation hétérogène ne soient pas polluées. Dans le deuxième scénario, MYKE serait activé en prenant en compte la variation spatiale et temporelle du degré d'acidité de chaque INP.

En parallèle, une simulation dans la même configuration, mais avec le schéma microphysique non modifié permettrait d'examiner la variabilité interne du modèle et sa sensibilité à l'utilisation de l'un ou l'autre des schémas de nucléation hétérogène des cristaux sur l'Arctique. La variabilité interne de GEM-MACH pour le climat arctique est relativement élevée en hiver (Girard et Bekcic 2005; Rinke *et al.* 2006; Girard et Stefanof 2007; Girard *et al.* 2013). Par conséquent, un grand nombre de simulations serait nécessaires pour distinguer le signal climatique étudié de la variabilité du modèle. Chaque simulation au sein d'un ensemble de plusieurs membres serait initialisée avec des conditions différentes, selon Rinke *et al.* (2000).

MYKE se limite à la nucléation hétérogène de la glace sur les particules de poussière (mineral dust) seulement. D'autres travaux futurs pourraient porter sur la nucléation hétérogène de la glace sur d'autres types de particules, par exemple les particules biologiques primaires (bactéries, spores fongiques et pollens) (Chernoff et Bertram 2010; DeMott *et al.* 2010b; Hoose *et al.* 2010; Hoose et Möhler 2012; Hummel *et al.* 2018). Ces INPs de compositions chimiques différentes pourraient très bien se comporter différemment de la kaolinite lorsqu'elles sont recouvertes d'acide sulfurique (Girard *et al.* 2013). La prise en compte de la composition mixte des aérosols pour développer des paramétrages spécifiques de la nucléation hétérogène des cristaux pourrait améliorer les simulations des nuages de glace où des panaches d'aérosols de différents types sont observés.

Finalement, GEM-MACH pourrait être appliqué en l'Arctique sur la base des scénarios d'émissions futures pour determiner l'impact des nuages glacés sur le changement climatique futur de cette région particulièrement sensible aux forçages anthropiques.

## ANNEXE A

Cette annexe présente une analyse statistique des principales variables sur les nuages issues du modèles WRF telles que présenté au chapitre III (Tableau A1) et de WRF-Chem au chapitre IV (Tableau A2) par rapport aux données observées *in situ*. L'erreur quadratique moyenne (RMSE), le biais, l'erreur relative moyenne (RE) et la corrélation de Pearson sont calculés comme suit :

$$RMSE = \left[\frac{1}{N}\sum_{k=1}^{N} (X_{mod} - X_{obs})^2\right]^{1/2}$$
(A.1)

$$Bias = \frac{1}{N} \sum_{N=1}^{N} (X_{mod} - X_{obs})$$
(A.2)

$$RE = \frac{100}{N} \sum_{k=1}^{N} \left| \frac{X_{mod} - X_{obs}}{X_{obs}} \right|$$
(A.3)

$$Cor = \frac{\frac{1}{N} \sum^{N} (X_{mod} - \overline{X}_{mod}) (X_{obs} - \overline{X}_{obs})}{\sqrt{\frac{1}{N} \sum^{N} (X_{mod} - \overline{X}_{mod})^{2}} \sqrt{\frac{1}{N} \sum^{N} (X_{obs} - \overline{X}_{obs})^{2}}}$$
(A.4)

où  $X_{mod}$ ,  $\overline{X}_{mod}$ ,  $X_{obs}$  et  $\overline{X}_{obs}$  sont respectivement la variable simulée, la moyenne de la variable simulée, la variable observée et la moyenne de la variable observée. N(50) est la taille de l'échantillon.

La Transformation z de Fisher (z) est utilisée dans le calcul des intervalles de confiance du coefficient de corrélation de Pearson, et pour tester la significativité des différences entre les coefficients de corrélation. z est calculé comme suit :

$$z = \frac{1}{0.5} \ln \frac{(1+r)}{(1-r)} = \tanh^{-1}(r)$$
(A.5)

où *ln* est le logarithme népérien (base e). L'écart type de z est :

$$\sigma_s = \frac{1}{\sqrt{N-3}} \tag{A.6}$$

Les tableaux suivants présentent ces statistiques pour les simulations de chaque vol utilisés dans cette étude et pour les variables de températures (T), de l'humidité relative par rapport à la glace (RH<sub>i</sub>), du contenue en eau gelée des nuages (IWC), de la concentration de cristaux dans les nuages (N<sub>i</sub>) et du rayon moyen des cristaux de glace (R<sub>i</sub>).

Table A.1 En relation avec le chapitre III. Voici l'Erreur quadratique moyenne (RMSE), erreur relative moyenne (RE), le biais (Bias) et le coefficient de corrélation (Cor) pour la température (T), l'humidité relative par rapport glace (RHi), le contenu en eau solide (IWC), la concentration en nombre des cristaux de glace (Ni) et le rayon moyen des cristaux de glace (Ri) pour les trois simulations (WRF, WRF np et WRF p) comparés à ISDAC.

							Cor
Flight	Variable	Simulation	RMSE	RE (%)	Bias	COR	confidence interval
F12	Т	WRF	1.73	-6.72	-1.50	0.99	(0.99;1)

		WRF_np	1.71	-6.65	-1.48	0.99	(0.99;1)
		WRF_p	1.73	-6.72	-1.50	0.99	(0.99;1)
		WRF	10.57	-0.13	0.13	0.89	(0.83;0.93)
	$RH_{i}$	WRF_np	10.43	0.05	-0.05	0.90	(0.85;0,94)
		WRF_p	10.71	0.11	-0.11	0.87	(0.80;0.92)
		WRF	0.012	99.87	-0.009	-	(-
						0.06	0.30;0.17)
	IWC	WRF_np	0.010	92.11	-0.008	0.28	(0.04;0.50)
		WRF_p	0.012	99.96	-0.009	-	(-
						0.06	0.30;0.18)
		WRF	588.57	95.24	-259.53	0.44	(0.22;0.61)
	Ni	WRF_np	520.32	78.59	-214.16	0.66	(0.50;0.78)
		WRF_p	589.33	94.28	-256.92	0.28	(0.05;0.49)
		WRF	25.90	98.44	-25.00	-	(-0.60;-
						0.39	0.15)
	Ri	WRF_np	20.14	50.18	-12.72	-	(-
	Ki					0.20	0.45;0.06)
		WRF_p	25.19	99.15	-25.18	-	(-0.60;-
						0.39	0.15)
F13	Т	WRF	1.96	-7.48	-1.74	0.99	(0.99;1)
		WRF_np	1.91	-7.28	-1.69	0.99	(0.99;1)

		WRF_p	1.94	-7.39	-1.72	0.99	(0.99;1)
	RHi	WRF	7.36	4.53	-4.92	0.86	(0.80;0.92)
		WRF_np	11.47	7.49	-8.14	0.77	(0.65;0.85)
		WRF_p	9.91	6,36	-7.00	0.81	(0.72;0.88)
		WRF	0.040	96.96	-0.022	-	(-
						0.77	0.85;0.65)
	IWC	WRF_np	0.020	-25.83	-0.005	-	(- 0.83:0.60)
		WDE	0.000	22.11	0.007	0.75	0.85,0.00)
		WRF_p	0.020	33.11	-0.007	- 0.63	(- 0.76;0.46)
		WRF	244 78	99.01	-132.66		(-
	Ni	WR	244.70	<i>yy</i> .01	152.00	0.01	0,25;0.23)
		WRF_np	137.77	-67.97	91.07	-	(-
						0.04	0.28;0.21)
		WRF_p	113.52	75.28	-100.87	-	(- 0.18:031)
		WDE	57.50	100.26	44.70	0.07	(0.20.0.02)
		WRF	57.52	-129.36	44.70	0.58	(0.39;0.92)
	Ri	WRF_np	44.22	-88.33	30.52	0.94	(0.90;0.96)
		WRF_p	54.26	-145.63	50.32	0.93	(0.90;0.96)
F21	Т	WRF	2.50	-7.23	-2.13	0.99	(0.99;1)
1	-	WRF_np	2.38	-7.00	-2.05	0.99	(0.99;1)

		WRF_p	2.48	-7.25	-2.14	0.99	(0.99;1)
		WRF	30.38	15.94	-19.25	-	(-0.65;-
						0.48	0.28)
	RHi	WRF_np	32.41	18.90	-22.83	-	(-0.66;-
						0.49	0.28)
		WRF_p	30.56	16.43	-19.85	-	(-0.64;-
						0.47	0.26)
		WRF	0.011	100.00	-0.010	-	-
	IWC	WRF_np	0.015	-75.59	0.010	0.50	(0.30;0.66)
		WRF_p	0.008	66.75	-0.006	0.44	(0.23;0.62)
		WRF	9.36	87.14	-6.16	0.35	(0.13;0.55)
		WRF_np	302.64	-	234.63	0.40	(0.20;0.60)
	Ni			3316.76			
		WRF_p	6.82	-22.75	1.60	0.45	(0.23;0.62)
		WRF	78.27	100.00	76.23	-	-
		WRF_np	43.07	55.04	-41.96	0.84	
	Ri						(0.74;0.90)
		WRF_p	30.04	35.87	-27.55	0.86	
							(0.77;0.91)
F29	Т	WRF	2.39	-11.55	-2.33	0.99	(0.99;1)
		WRF_np	1.95	-9.30	-1.87	0.99	(0.99;1)

	WRF_p	1.97	-9.42	-1.90	0.99	(0.99;1)
	WRF	9.59	-0.56	0.59	0.35	(0.12;0.55)
$RH_{\rm i}$	WRF_np	10.91	5.12	-5.45	0.64	(0.47;0.77)
	WRF_p	9.68	3.77	-4.01	0.71	(0.57;0.81)
	WRF	0.080	88.08	-0.065	0.67	(0.52;0.79)
IWC	WRF_np	0.029	-22.52	0.016	0.79	(0.69;0.87)
	WRF_p	0.029	29.94	-0.022	0.80	(0.70;0.88)
	WRF	14.64	0.56	-0.05	-	(-
					0.13	0.37;0.11)
	WRF_np	1156.88	-		-	(-
Ni			9511.96	1013.76	0.12	0.35;0.12)
	WRF_p	164.82	-	133.61	-	(-
			1253.69		0.15	0.38;0.09)
	WRF	43.51	36.56	-29.29	0.77	(0.65;0.85)
Ri	WRF_np	88.82	87.14	-69.81	0.67	(0.52;0.79)
	WRF_p	66.67	63.30	-50.41	0.73	(0.61;0.83)

Table A.2 En relation avec le chapitre IV. Voici l'Erreur quadratique moyenne (RMSE), erreur relative moyenne (RE), le biais (Bias) et le coefficient de corrélation (Cor) pour la température

(T), l'humidité relative par rapport glace (RHi), le contenu en eau solide (IWC), la concentration en nombre des cristaux de glace (Ni) et le rayon moyen des cristaux de glace (Ri) pour les trois simulations (WRF, WRF\_np et WRF\_p) comparés à ISDAC.

Flight	Variable	Simulation	RMSE	Bias	Cor	COR confidence interval
		REF	1.92	-1.90	0.99	(0.99;1)
	Т	MYKE2	1.76	-1.72	0.99	(0.99;1)
		MYKE4	1.77	1.73	0.99	(0.99;1)
		REF	10.86	8.55	0.95	(0.90;0.98)
	$\mathrm{RH}_\mathrm{i}$	MYKE2	17.74	15.58	-0.61	(-0.82;-0.26)
F13		MYKE4	17.08	14.88	-0.26	(-0.61;0.17)
	IWC	REF	0.020	0.014	0.77	(0.52;0.90)
		MYKE2	0.010	0.012	0.70	(0.39;0.86)
		MYKE4	0.010	0.008	0.68	(0.35;0.85)
		REF	142.07	137.12	-0.03	(-0.45;0.40)
	Ni	MYKE2	151.24	-91.00	-0.32	(-0.65;0.12)
		MYKE4	84.60	-25.06	-0.34	(-0.66;0.10)
	Ri	REF	22.77	-21.84	0.90	(0.77;0.96)
		MYKE2	10.86	-8.58	0.89	(0.76;0.96)

		MYKE4	14.19	-12.07	0.90	(0.77;0.96)
		REF	3.30	-3.00	0.82	(0.57;0.93)
	Т	MYKE2	3.31	3.02	0.82	(0.57;0.93)
		MYKE4	3.30	3.01	0.82	(0.57;0.93)
		REF	55.71	51.68	-0.06	(-0.51;0.41)
	$RH_i$	MYKE2	56.02	52.28	-0.03	(-0.50;0.42)
		MYKE4	55.84	51.93	-0.05	(-0.51;0.43)
		REF	0.006	0.005		
F21	IWC	MYKE2	0.005	-0.003	0.84	(0.61;0.94)
		MYKE4	0.005	-0.003	0.86	(0.65;0.95)
		REF	12.07	6.83	0.59	(0.18;0.83)
	Ni	MYKE2	13.06	-5.66	0.73	(0.40;0.89)
		MYKE4	8.42	3.41	0.70	(0.34;0.87)
		REF	44.41	38.40		
	Ri	MYKE2	31.56	26.95	0.70	(0.36;0.88)
		MYKE4	36.81	31.14	0.48	(0.01;0.77)
		REF	2.65	2.64	0.99	(0.99;1)
F29	Т	MYKE2	2.17	2.16	0.99	(0.99;1)
		MYKE4	2.19	2.18	0.99	(0.99;1)

	REF	11.86	11.37	0.67	(0.35;0.85)
$RH_{i}$	MYKE2	16.67	16.31	0.65	(0.32;0.84)
	MYKE4	16.12	15.79	0.69	(0.38;0.86)
	REF	0.034	0.033	0.70	(0.44;0.87)
IWC	MYKE2	0.008	-0.002	0.68	(0.36;0.85)
	MYKE4	0.011	-0.008	0.67	(0.34;0.85)
	REF	19.80	-20.62	0.49	(0.10;0.76)
Ni	MYKE2	150.20	- 146.12	-0.53	(-0.78;0.15)
	MYKE4	100.01	-99.36	-0.53	(0.78;0.14)
	REF	59.88	59.21	0.74	(0.47;0.88)
Ri	MYKE2	63.31	62.16	0.81	(0.58;0.91)
	MYKE4	60.33	58.84	-0.10	(-0.48;0.35)

## ANNEXE B

Cette section présente les Figures B1 à B6 qui montrent la comparaison entre les résultats obtenus par WRF-Chem avec MYKE sur les 4 cas issus de ISDAC étudiés dans la première partie avec les observations satellitaires DARDAR. Cette comparaison montre une grande amélioration de la représentation des TIC-1 et TIC-2 avec MYKE comparativement au schéma microphysique d'origine.





Figure B.1 Observed DARDAR and simulated cross section of IWC from WRF, MYKE2, MYKE2 simulations along T12 (A) and T13 (B) tracks. The red rectangles correspond to the whole area where the flights have been performed (Figure 2.1).





Figure B. 2 Observed DARDAR and simulated cross section of  $N_i$  from WRF, MYKE2, MYKE2 simulations along T12 (A) and T13 (B) tracks. The red rectangles correspond to the whole area where the flights have been performed (Figure 2.1).





Figure B.3 Observed DARDAR and simulated cross section of  $R_i$  from WRF, MYKE2, MYKE2 simulations along T12 (A) and T13 (B) tracks. The red rectangles correspond to the whole area where the flights have been performed (Figure 2.1).





Figure B. 4 Observed DARDAR and simulated cross section of IWC from WRF, MYKE2, MYKE2 simulations along T21 (A) and T29 (B) tracks. The red rectangles correspond to the whole area where the flights have been performed (Figure 2.1).





Figure B. 5 Observed DARDAR and simulated cross section of N<sub>i</sub> from WRF, MYKE2, MYKE2 simulations along T21 (A) and T29 (B) tracks. The red rectangles correspond to the whole area where the flights have been performed (Figure 2.1).





Figure B. 6 Observed DARDAR and simulated cross section of  $R_i$  from WRF, MYKE2, MYKE2 simulations along T21 (A) and T29 (B) tracks. The red rectangles correspond to the whole area where the flights have been performed (Figure 2.1).

## BIBLIOGRAPHIE

Abbatt JPD, Leaitch WR, Aliabadi AA, Bertram AK, Blanchet J-P, Boivin-Rioux A, Bozem H, Burkart J, Chang RYW, Charette J, Chaubey JP, Christensen RJ, Cirisan A, Collins DB, Croft B, Dionne J, Evans GJ, Fletcher CG, Galí M, Ghahremaninezhad R, Girard E, Gong W, Gosselin M, Gourdal M, Hanna SJ, Hayashida H, Herber AB, Hesaraki S, Hoor P, Huang L, Hussherr R, Irish VE, Keita SA, Kodros JK, Köllner F, Kolonjari F, Kunkel D, Ladino LA, Law K, Levasseur M, Libois Q, Liggio J, Lizotte M, Macdonald KM, Mahmood R, Martin RV, Mason RH, Miller LA, Moravek A, Mortenson E, Mungall EL, Murphy JG, Namazi M, Norman A-L, amp, apos, Neill NT, Pierce JR, Russell LM, Schneider J, Schulz H, Sharma S, Si M, Staebler RM, Steiner NS, Thomas JL, von Salzen K, Wentzell JJB, Willis MD, Wentworth GR, Xu J-W et Yakobi-Hancock JD. 2019. Overview paper: New insights into aerosol and climate in the Arctic. Atmospheric Chemistry and Physics, 19 : 2527-2560.

Albrecht BE. 1989. Aerosols, Cloud Microphysics, and Fractional Cloudiness. Science.

- Ansmann A, Tesche M, Seifert P, Althausen D, Engelmann R, Fruntke J, Wandinger U, Mattis I et Müller D. 2009. Evolution of the ice phase in tropical altocumulus: SAMUM lidar observations over Cape Verde. Journal of Geophysical Research, 114.
- Archer-Nicholls S, Lowe D, Darbyshire E, Morgan WT, Bela MM, Pereira G, Trembath J, Kaiser JW, Longo KM, Freitas SR, Coe H et McFiggans G. 2015. Characterising Brazilian biomass burning emissions using WRF-Chem with MOSAIC sectional aerosol. Geosci Model Dev, 8 : 549-577.
- Atkinson DE, Sassen K, Hayashi M, Cahill CF, Shaw G, Harrigan D et Fuelberg H. 2013. Aerosol properties over Interior Alaska from lidar, DRUM Impactor sampler, and OPC-sonde measurements and their meteorological context during ARCTAS-A, April 2008. Atmospheric Chemistry and Physics, 13 : 1293-1310.
- Barrie LA et Hoff RM. 1985. Five years of air chemistry observations in the Canadian Arctic. Atmospheric Environment (1967), 19 : 1995-2010.
- Barrie LA, Gregor D, Hargrave B, Lake R, Muir D, Shearer R, Tracey B et Bidleman T. 1992. Arctic contaminants: sources, occurrence and pathways. Science of the Total Envirinement.
- Bennartz R, Shupe M et Turner D. 2013. July 2012 Greenland melt extent enhanced by low-level liquid clouds. Nature.

- Berg LK, Shrivastava M, Easter RC, Fast JD, Chapman EG, Liu Y et Ferrare RA. 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, 8 : 409-429.
- Bigg EK. 1953. The formation of atmospheric ice crystals by the freezing of droplets. Royal Meteorological Society, 79.
- Bigg EK. 1980. Comparison of aerosol at four baseline atmospheric monitoring stations. American Meteorological Society.
- Blanchet J et Girard E. 1994. Arctic 'greenhouse effect'. Nature.
- Boucher O, Randall D, Artaxo P, Bretherton C, Feingold G, Forster P, Kerminen V-M, Kondo Y, Liao H et Lohmann U. 2013. Clouds and aerosols. Dans : Climate change 2013: the physical science basis Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge University Press, p. 571-657.
- Brown. PRA et Francis. PN. 1994. Improved Measurements of the Ice Water Content in Cirrus Using a Total-Water Probe. Journal of Atmospheric and Oceanic Technology, 12.
- Burton SP, Ferrare RA, Hostetler CA, Hair JW, Rogers RR, Obland MD, Butler CF, Cook AL, Harper DB et Froyd KD. 2012. Aerosol classification using airborne High Spectral Resolution Lidar measurements methodology and examples. Atmospheric Measurement Techniques, 5 : 73-98.
- Chen F et DUDHIA J. 2001. Coupling an Advanced Land Surface-Hydrology Model with the Penn State–NCAR MM5 Modeling System. Part I: Model Implementation and Sensitivity. American Meteorological Society, VOLUME 129.
- Chen J-P, Hazra, A. et Levin Z. 2008. Parameterizing ice nucleation rates using contact angle and activation energy derived from laboratory data. Atmospheric Chemistry and Physics.
- Chernoff DI et Bertram AK. 2010. Effects of sulfate coatings on the ice nucleation properties of a biological ice nucleus and several types of minerals. Journal of Geophysical Research, 115.
- Chin M et Ginoux P. 2002. Tropospheric Aerosol Optical Thickness from the GOCART Model and Comparisons with Satellite and Sun Photometer Measurements. American Meteorological Society.
- Cirisan A, Girard E, Blanchet J-P, Keita S, Gong W, Irish V et Bertam A. 2019. Modellings of the observed INP concentration during Arctic summer campaigns, in preparation.
- Cirisan A, Girard E, Blanchet J-P, Keita SA, Gong W, Irish V et Bertram AK. 2020. CNT Parameterization Based on the Observed INP Concentration during Arctic Summer Campaigns in a Marine Environment. Atmosphere, 11 : 916.

- Cohard J-M et Pinty J-P. 2000. A comprehensive two-moment warm microphysical bulk scheme. II: 2D experiments with a non-hydrostatic model. Royal Meteorological Society.
- Connolly PJ, Möhler O, Field PR, Saathoff H, Burgess R, Choularton TW et Gallagher MW. 2013. Corrigendum to: "Studies of heterogeneous freezing by three different desert dust samples", Atmos. Chem. Phys., 9, 2805–2824, 2009. Atmospheric Chemistry and Physics, 13 : 10079-10080.
- Cooper WA. 1986. Ice Initiation in Natural Clouds American Meteorological Society.
- Coté J, Gravel. S, Méthot. A, Patoine. A, Roch. M et Staniforth. A. 1998. The Operational CMC–MRB Global Environmental Multiscale (GEM) Model.Part I: Design Considerations and Formulation. American Meteorological Society, 126.
- Curry JA, Hobbs PV, King M.D et Randall DA. 2000. FIRE Arctic Clouds Experiment. Bulletin of the American Meteorological Society.
- Curry JA, W.B. R, Randall D et Schramm JL. 1996. Overview of Arctic cloud and radiation characteristics. journal of climate.
- Cziczo DJ, Garimella S, Raddatz M, Hoehler K, Schnaiter M, Saathoff H, Moehler O, Abbatt JPD et Ladino LA. 2013. Ice nucleation by surrogates of Martian mineral dust: What can we learn about Mars without leaving Earth? Journal of Geophysical Research: Planets, 118 : 1945-1954.
- de Boer G, Morrison H, Shupe MD et Hildner R. 2011. Evidence of liquid dependent ice nucleation in high-latitude stratiform clouds from surface remote sensors. Geophysical Research Letters, 38.
- Delanoë J et Hogan RJ. 2008. A variational scheme for retrieving ice cloud properties from combined radar, lidar, and infrared radiometer. Journal of Geophysical Research, 113.
- Delanoë J et Hogan RJ. 2010. Combined CloudSat-CALIPSO-MODIS retrievals of the properties of ice clouds. Journal of Geophysical Research, 115.
- DeMott PJ, Meyers MP et Cotton WR. 1992. Parameterization and Impact of Ice Initiation Processes Relevant to Numeral Model Similitions of Cirrus Clouds. American Meteorological Society, 77.
- DeMott PJ, Meyers MP et Cotton R. 1994. Parameterization and impact of ice initiation processes relevant to numerical model simulations of cirrus clouds. atmospheric science.
- DeMott PJ, Möhler O, Stetzer O et Vali G. 2010a. Resurgence in Ice Nuclei
- Measurment Research. American Meteorological Society.
- DeMott PJ, Prenni AJ, Liu X, Kreidenweis SM, Petters MD, Twohy CH, Richardson MS, Eidhammer T et Rogers DC. 2010b. Predicting global atmospheric ice nuclei distributions and their impacts on climate. Proc Natl Acad Sci U S A, 107 : 11217-11222.

- Deng M, Mace GG, Wang Z et Lawson RP. 2013. Evaluation of Several A-Train Ice Cloud Retrieval Products with In Situ Measurements Collected during the SPARTICUS Campaign. Journal of Applied Meteorology and Climatology, 52 : 1014-1030.
- Devasthale A, Tjernström M, Karlsson K-G, Thomas MA, Jones C, Sedlar J et Omar AH. 2017. The vertical distribution of thin features over the Arctic analysed from CALIPSO observations. Tellus B: Chemical and Physical Meteorology, 63 : 77-85.
- Dong X, Xi B, Crosby K, Long CN, Stone RS et Shupe MD. 2010. A 10 year climatology of Arctic cloud fraction and radiative forcing at Barrow, Alaska. Journal of Geophysical Research, 115.
- Durant AJ. 2005. Evaporation freezing by contact nucleation inside-out. Geophysical Research Letters, 32.
- Eastwood ML, Cremel S, Gehrke C, Girard E et Bertram AK. 2008. Ice nucleation on mineral dust particles: Onset conditions, nucleation rates and contact angles. Journal of Geophysical Research, 113.
- Eastwood ML, Cremel S, Wheeler M, Murray BJ, Girard E et Bertram AK. 2009. Effects of sulfuric acid and ammonium sulfate coatings on the ice nucleation properties of kaolinite particles. Geophysical Research Letters, 36.
- Eckhardt S, Stohl A, Beirle S. et Spichtinger N. 2003. The North Atlantic Oscillation controls air pollution transport to the Arctic. Atmospheric Chemistry and Physics.
- Eckhardt S, Quennehen B, Olivié DJL, Berntsen TK et Cherian R. 2015. Current model capabilities for simulating black carbon and sulfate concentrations in the Arctic atmosphere: a multi-model evaluation using a comprehensive measurement data set" published in Atmos. Chem. Phys., 15, 9413–9433, 2015. Atmospheric Chemistry and Physics.
- Eidhammer T, DeMott PJ et Kreidenweis SM. 2009. A comparison of heterogeneous ice nucleation parameterizations using a parcel model framework. Journal of Geophysical Research, 114.
- Emmons LK, Walters S et Hess, P. G. 2010. Description and evaluation of the Model for Ozone and Related chemical Tracers, version 4 (MOZART-4). geophysical Model Development.
- Fast JD, Gustafson Jr. WI, Easter RC, Zaveri RA, Barnard JC, Chapman EG, Grell GA et Peckham SE. 2006. Evolution of ozone, particulates, and aerosol direct radiative forcing in the vicinity of Houston using a fully coupled meteorology-chemistry-aerosol model. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 111.
- Ferrier BD. 1994. A Double-Moment Multiple-Phase Four-Class Bulk Ice Scheme. Part I: Description. American Meteorological Society.

- Fisher JA, Jacob DJ, Wang Q, Bahreini R, Carouge CC, Cubison MJ, Dibb JE, Diehl T, Jimenez JL, Leibensperger EM, Lu Z, Meinders MBJ, Pye HOT, Quinn PK, Sharma S, Streets DG, van Donkelaar A et Yantosca RM. 2011. Sources, distribution, and acidity of sulfate–ammonium aerosol in the Arctic in winter–spring. Atmospheric Environment, 45 : 7301-7318.
- Fletcher NH. 1962. The physics of rainclouds. Cambridge University Press.
- Foot JS. 1988. Some observations of the optical properties of clouds. II: Cirrus. Royal Meteorological Society, 114.
- Fornea AP, Brooks SD, Dooley JB et Saha A. 2009. Heterogeneous freezing of ice on atmospheric aerosols containing ash, soot, and soil. Journal of Geophysical Research, 114.
- Fukuta N et Schaller RC. 1982. Ice Nucleation by Aerosol Particles. Theory of Condensation-Freezing Nucleation. American Meteorological Society.
- Fyfe JC, von Salzen K, Gillett NP, Arora VK, Flato GM et McConnell JR. 2013. One hundred years of Arctic surface temperature variation due to anthropogenic influence. Sci Rep, 3 : 2645.
- Garrett T, Zhao C et Novelli P. 2010. Assessing the relative contributions of transport efficiency and scavenging to seasonal variability in Arctic aerosol. Tellus B: Chemical and Physical Meteorology, 62 : 190-196.
- Gayet J-F, Mioche G et Dornbrack A. 2009. Microphysical and optical properties of Arctic mixed-phase clouds. The 9 April 2007 case study. Atmospheric Chemistry and Physics.
- Girard E. 1998. Étude des effet indirect des aérosols acides en Arctiques. PhD these. Mcgill university.
- Girard E et Blanchet J. 2001. Microphysical Parameterization of Arctic Diamond Dust, Ice Fog, and Thin Stratus for Climate Models. Journal of the Atmospheric Sciences.
- Girard E et Bekcic B. 2005. Sensitivity of an Arctic regional climate model to the horizontal resolution during winter: implications for aerosol simulation. International Journal of Climatology, 25 : 1455-1471.
- Girard E et Stefanof A. 2007. Assessment of the dehydration-greenhouse feedback over the Arctic during February 1990. International Journal of Climatology, 27 : 1047-1058.
- Girard E, Blanchet J-P et Dubois Y. 2005. Effects of arctic sulphuric acid aerosols on wintertime lowlevel atmospheric ice crystals, humidity and temperature at Alert, Nunavut. Atmospheric Research, 73 : 131-148.
- Girard E, Dueymes G, Du P et Bertram AK. 2013. Assessment of the effects of acid-coated ice nuclei on the Arctic cloud microstructure, atmospheric dehydration, radiation and temperature during winter. International Journal of Climatology, 33 : 599-614.

- Glaccum RA et Prospero JM. 1980. Saharan aerosols over the tropical North Atlantic Mineralogy. Marine Geology, 37 : 295-321.
- Grell GA, Knoche R, Peckham SE et McKeen SA. 2004. Online versus offline air quality modeling on cloud-resolving scales. Geophysical Research Letters, 31.
- Grell GA, Peckham SE, Schmitz R, McKeen SA et Frost G. 2005. Fully coupled "online" chemistry within the WRF model.
- Grenier P et Blanchet J-P. 2010. Investigation of the sulphate-induced freezing inhibition effect from CloudSat and CALIPSO measurements. Journal of Geophysical Research, 115.
- Grenier P, Blanchet JP et Muñoz-Alpizar R. 2009. Study of polar thin ice clouds and aerosols seen by CloudSat and CALIPSO during midwinter 2007. Journal of Geophysical Research, 114.
- Hartmann J, West AJ, Renforth P, Köhler P, De La Rocha CL, Wolf-Gladrow DA, Dürr HH et Scheffran J. 2013. Enhanced chemical weathering as a geoengineering strategy to reduce atmospheric carbon dioxide, supply nutrients, and mitigate ocean acidification. Reviews of Geophysics, 51 : 113-149.
- Hoose C et Möhler O. 2012. Heterogeneous ice nucleation on atmospheric aerosols: a review of results from laboratory experiments. Atmospheric Chemistry and Physics, 12 : 9817-9854.
- Hoose C, Kristjánsson JE, Chen J-P et Hazra A. 2010. A Classical-Theory-Based Parameterization of Heterogeneous Ice Nucleation by Mineral Dust, Soot, and Biological Particles in a Global Climate Model. Journal of the Atmospheric Sciences, 67 : 2483-2503.
- Hummel M, Hoose C, Pummer B, Schaupp C, Fröhlich-Nowoisky J et Möhler O. 2018. Simulating the influence of primary biological aerosol particles on clouds by heterogeneous ice nucleation. Atmospheric Chemistry and Physics, 18 : 15437-15450.
- Iacono MJ, Delamere JS, Mlawer EJ, Shephard MW, Clough SA et Collins WD. 2008. Radiative forcing by long-lived greenhouse gases: Calculations with the AER radiative transfer models. Journal of Geophysical Research, 113.
- Intrieri JM. 2002. An annual cycle of Arctic surface cloud forcing at SHEBA. Journal of Geophysical Research, 107.
- IPCC. 2007. Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M. Tignor and H.L. Miller (eds.)]. Cambridge University Press.
- IPCC. 2013. Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Stocker, T.F., D.

Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley (eds.)]. Cambridge University Press.

- Iyer GC, Edmonds JA, Fawcett AA, Hultman NE, Alsalam J, Asrar GR, Calvin KV, Clarke LE, Creason J, Jeong M, Kyle P, McFarland J, Mundra A, Patel P, Shi W et McJeon HC. 2015. The contribution of Paris to limit global warming to 2 °C. Environmental Research Letters, 10.
- Jacobson MZ, Turco RP, Jensen EJ et Toon OB. 1994. Modeling coagulation among particles of different composition and size. Atmospheric Environment, 28 : 1327-1338.
- Janjic Z. 1994. The Step-Mountain Eta Coordonate Model: Further Developments of convection, Viscous Sublayer, and Turbulence Closure Shemes. American Meteorological Society.
- Jouan C. 2013. LES NUAGES DE GLACE EN ARCTIQUE: MÉCANISMES DE FORMATION.
- Jouan C, Girard E, Pelon J, Gultepe I, Delanoë J et Blanchet J-P. 2012. Characterization of Arctic ice cloud properties observed during ISDAC. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 117 : n/a-n/a.
- Jouan C, Pelon J, Girard E, Ancellet G, Blanchet JP et Delanoë J. 2014. On the relationship between Arctic ice clouds and polluted air masses over the North Slope of Alaska in April 2008. Atmospheric Chemistry and Physics, 14 : 1205-1224.
- Kahl J, Charlevoix D et Zaftseva N. 1993. Absence of evidence for greenhouse warming over the Arctic Ocean in the past 40 years. Nature.
- Kahl JD et Serreze MC. 1992. Low-Level Temperature Inversions of the Eurasian Arctic and Comparisons with Soviet Drifting Station Data. American Meteorological Society.
- Kanji ZA, Welti A, Chou C, Stetzer O et Lohmann U. 2013. Laboratory studies of immersion and deposition mode ice nucleation of ozone aged mineral dust particles. Atmospheric Chemistry and Physics, 13 : 9097-9118.
- Kanji ZA, Ladino LA, Wex H, Boose Y, Burkert-Kohn M, Cziczo DJ et Krämer M. 2017. Overview of Ice Nucleating Particles. Meteorological Monographs, 58 : 1.1-1.33.
- Kay JE, L'Ecuyer T, Chepfer H, Loeb N, Morrison A et Cesana G. 2016. Recent Advances in Arctic Cloud and Climate Research. Current Climate Change Reports, 2 : 159-169.
- Keita S, Girard E, Raut J-C, Pelon J, Blanchet J-P, Lemoine O et Onishi T. 2019. Simulating Arctic Ice Clouds during Spring Using an Advanced Ice Cloud Microphysics in the WRF Model. Atmosphere, 10.
- Keita SA et Girard E. 2016. Importance of Chemical Composition of Ice Nuclei on the Formation of Arctic Ice Clouds. Pure and Applied Geophysics, 173 : 3141-3163.

- Khvorostyanov VI et Curry JA. 2009. Critical humidities of homogeneous and heterogeneous ice nucleation: Inferences from extended classical nucleation theory. Journal of Geophysical Research, 114.
- Klein SA, McCoy RB, Morrison H, Ackerman AS, Avramov A, Boer Gd, Chen M, Cole JNS, Del Genio AD, Falk M, Foster MJ, Fridlind A, Golaz J-C, Hashino T, Harrington JY, Hoose C, Khairoutdinov MF, Larson VE, Liu X, Luo Y, McFarquhar GM, Menon S, Neggers RAJ, Park S, Poellot MR, Schmidt JM, Sednev I, Shipway BJ, Shupe MD, Spangenberg DA, Sud YC, Turner DD, Veron DE, Salzen Kv, Walker GK, Wang Z, Wolf AB, Xie S, Xu K-M, Yang F et Zhang G. 2009. Intercomparison of model simulations of mixed-phase clouds observed during the ARM Mixed-Phase Arctic Cloud Experiment. I: single-layer cloud. Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society, 135 : 979-1002.

Kong F et Yau MK. 1997. An explicit approach to microphysics in MC2. atmospheric oceanic.

- Kulkarni G et Dobbie S. 2010. Ice nucleation properties of mineral dust particles: determination of onset RHi, IN active fraction, nucleation time-lag, and the effect of active sites on contact angles. Atmospheric Chemistry and Physics.
- Lawson RP, Woods S, Jensen E, Erfani E, Gurganus C, Gallagher M, Connolly P, Whiteway J, Baran AJ, May P, Heymsfield A, Schmitt CG, McFarquhar G, Um J, Protat A, Bailey M, Lance S, Muehlbauer A, Stith J, Korolev A, Toon OB et Krämer M. 2019. A Review of Ice Particle Shapes in Cirrus formed In Situ and in Anvils. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 124 : 10049-10090.
- Lin Y-L, Farley RD et Orville HD. 1983. Bulk Parameterization of the Snow Field in a Cloud Model. Journal of Applied Meteorology and Climatology, 22 : 1065-1092.
- Marelle L. 2016. Regional modeling of aerosols and ozone in the arctic: air quality and radiative impacts from local and remote pollution sources. Thèse.
- Marelle L, Raut JC, Thomas JL, Law KS, Quennehen B, Ancellet G, Pelon J, Schwarzenboeck A et Fast JD. 2015. Transport of anthropogenic and biomass burning aerosols from Europe to the Arctic during spring 2008. Atmos Chem Phys, 15 : 3831-3850.
- Marelle L, Thomas JL, Raut JC, Law KS, Jalkanen JP, Johansson L, Roiger A, Schlager H, Kim J, Reiter A et 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. Atmos Chem Phys, 16 : 2359-2379.
- Martin GM, Johnson DW et Spice A. 1994. The Measurement and Parameterization of Effective Radius of Droplets in Warm Stratocumulus Clouds. Journal of Atmospheric Sciences, 51 : 1823-1842.
- McFarquhar GM et Heymsfield AJ. 1998. The Definition and Significance of an Effective Radius for Ice Clouds. Journal of the Atmospheric Sciences, 55 : 2039-2052.

- McFarquhar GM, Baumgardner D et Heymsfield AJ. 2017. Background and Overview. Meteorological Monographs, 58 : v-ix.
- McFarquhar GM, Ghan S, Verlinde J, Korolev A, Strapp JW, Schmid B, Tomlinson JM, Wolde M, Brooks SD, Cziczo D, Dubey MK, Fan J, Flynn C, Gultepe I, Hubbe J, Gilles MK, Laskin A, Lawson P, Leaitch WR, Liu P, Liu X, Lubin D, Mazzoleni C, Macdonald A-M, Moffet RC, Morrison H, Ovchinnikov M, Shupe MD, Turner DD, Xie S, Zelenyuk A, Bae K, Freer M et Glen A. 2011. Indirect and Semi-direct Aerosol Campaign. Bulletin of the American Meteorological Society, 92 : 183-201.
- Meyers MP, Demott. PJ et Cotton. WR. 1991. New Primary Ice-Nucleation Parameterization in an Explicit Cloud Model.
- Milbrandt JA et Yau MK. 2005a. A Multimoment Bulk Microphysics Parameterization. Part I: Analysis of the Role of the Spectral Shape Parameter. American Meteorological Society.
- Milbrandt JA et Yau MK. 2005b. A Multimoment Bulk Microphysics Parameterization. Part I: Analysis of the Role of the Spectral Shape Parameter. American Meteorological Society.
- Mölders N, Tran HNQ, Quinn P, Sassen K, Shaw GE et Kramm G. 2011. Assessment of WRF/Chem to simulate sub–Arctic boundary layer characteristics during low solar irradiation using radiosonde, SODAR, and surface data. Atmospheric Pollution Research, 2 : 283-299.
- Moran MD, Ménard S, Talbot D, Huang P, Makar PA, Gong W, Landry H, Gravel S, Gong S, Crevier L-P, Kallaur A et Sassi M. 2010. Particulate-matter forecasting with GEM-MACH15, a new Canadian air-quality forecast model, in: Air pollution modelling and its application XX, edited by: Steyn, D. G. and Rao, S. T., Springer, Dordrecht, 289–292.
- Morisson H, Curry JA, Shupe MD et zuidema P. 2003. A New Double-Moment Microphysics Parameterization for Application in Cloud and Climate Models. Part II: Single-Column Modeling of Arctic Clouds. Journal of the Atmospheric Sciences, 67.
- Morisson H, J.A. C, Shupe M et zuidema. P. 2005. A New Double-Moment Microphysics Parameterization for Application in Cloud and Climate Models. Part II: Single-Column Modeling of Arctic Clouds. Journal of Atmospheric and Oceanic Technology.
- Morrison H, Thompson G et Tatarskii V. 2009. Impact of Cloud Microphysics on the Development of Trailing Stratiform Precipitation in a Simulated Squall Line: Comparison of One- and Two-Moment Schemes. Monthly Weather Review, 137 : 991-1007.
- Morrison H, de Boer G, Feingold G, Harrington J, Shupe MD et Sulia K. 2011. Resilience of persistent Arctic mixed-phase clouds. Nature Geoscience, 5 : 11-17.
- Murray BJ, O'Sullivan D, Atkinson JD et Webb ME. 2012. Ice nucleation by particles immersed in supercooled cloud droplets. Chem Soc Rev, 41 : 6519-6554.
- Niedermeier D, Ervens B, Clauss T, Voigtländer J, Wex H, Hartmann S et Stratmann F. 2014. A computationally efficient description of heterogeneous freezing: A simplified version of the Soccer ball model. Geophysical Research Letters, 41 : 736-741.
- Ovchinnikov M, Korolev A et Fan J. 2011. Effects of ice number concentration on dynamics of a shallow mixed-phase stratiform cloud. Journal of Geophysical Research, 116.
- Panda AK, Mishra BG, Mishra DK et Singh RK. 2010. Effect of sulphuric acid treatment on the physico-chemical characteristics of kaolin clay. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 363 : 98-104.
- Phillips VTJ, Demott PJ, Andronache C, Pratt KA, Prather KA, Subramanian R et Twohy C. 2013. Improvements to an Empirical Parameterization of Heterogeneous Ice Nucleation and Its Comparison with Observations. Journal of the Atmospheric Sciences, 70 : 378-409.
- Pinto JO. 1998. Autumnal Mixed-Phase Cloudy Boundary Layers in the Arctic. Journal of the Atmospheric Sciences.
- Pitari G, Di Genova G, Mancini E, Visioni D, Gandolfi I et Cionni I. 2016. Stratospheric Aerosols from Major Volcanic Eruptions: A Composition-Climate Model Study of the Aerosol Cloud Dispersal and e-folding Time. Atmosphere, 7.
- Pithan F et Mauritsen T. 2014. Arctic amplification dominated by temperature feedbacks in contemporary climate models. Nature Geoscience, 7 : 181-184.
- Prenni AJ, Petters MD, Kreidenweis SM, DeMott PJ et Ziemann PJ. 2007. Cloud droplet activation of secondary organic aerosol. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 112.
- Pruppacher H et Klett J. 1997. Microphysics of Clouds and Precipitation.
- Quinn PK, Bates TS, Baum E, Doubleday N, Fiore AM, Flanner M, Fridlind A, Garrett TJ, Koch D, Menon S, Shindell D, Stohl A et Warren SG. 2008. Short-lived pollutants in the Arctic: their climate impact and possible mitigation strategies. Atmos Chem Phys, 8 : 1723-1735.
- Raut J-C, Marelle L, Fast JD, Thomas JL, Weinzierl B, Law KS, Berg LK, Roiger A, Easter RC, Heimerl K, Onishi T, Delanoë J et Schlager H. 2017. Cross-polar transport and scavenging of Siberian aerosols containing black carbon during the 2012 ACCESS summer campaign. Atmospheric Chemistry and Physics, 17 : 10969-10995.
- Rinke A, Lynch AH et Dethloff K. 2000. Intercomparison of Arctic regional climate simulations: Case studies of January and June 1990. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 105 : 29669-29683.
- Rinke A, Maslowski W, Dethloff K et Clement J. 2006. Influence of sea ice on the atmosphere: A study with an Arctic atmospheric regional climate model. Journal of Geophysical Research, 111.

- Romano F, Cimini D, Nilo S, Di Paola F, Ricciardelli E, Ripepi E et Viggiano M. 2017. The Role of Emissivity in the Detection of Arctic Night Clouds. Remote Sensing, 9.
- Rosenfeld D. 1999. TRMM Observed First Direct Evidence of Smoke from Forest Fires Inhibiting Rainfall. Geophysical Research Letters.
- Schmale J, Zieger P et Ekman AML. 2021. Aerosols in current and future Arctic climate. Nature Climate Change, 11: 95-105.
- Schröder D, Feltham DL, Flocco D et Tsamados M. 2014. September Arctic sea-ice minimum predicted by spring melt-pond fraction. Nature Climate Change, 4 : 353-357.
- Screen JA et Simmonds I. 2010. The central role of diminishing sea ice in recent Arctic temperature amplification. Nature, 464 : 1334-1337.
- Sedlar J et Devasthale A. 2012. Clear-sky thermodynamic and radiative anomalies over a sea ice sensitive region of the Arctic. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 117.
- Shantz NC, Gultepe I, Andrews E, Zelenyuk A, Earle ME, Macdonald AM, Liu PSK et Leaitch WR. 2014. Optical, physical, and chemical properties of springtime aerosol over Barrow Alaska in 2008. International Journal of Climatology, 34 : 3125-3138.
- Shaw G. 1982. Atmospheric Turbudity in the Polars Region. journal of Applied Meteorology.
- Shaw WJ, Allwine KJ, G.Fritz B et G.Chapman FCRPR. 2008. An evaluation of the wind erosion module in DUSTRAN. Atmospheric Environment.
- Shindell D et Chin M. 2008. A multi-model assessment of pollution transport to the Arctic. Atmospheric Chemistry and Physics.
- Shindell D, Kuylenstierna JCI et Vignati E. 2012. Simultaneously Mitigating Near-Term Climate Change and Improving Human Health and Food Security. Science.
- Shupe MD. 2011. Clouds at Arctic Atmospheric Observatories. Part II: Thermodynamic Phase Characteristics. Journal of Applied Meteorology and Climatology, 50 : 645-661.
- Shupe MD et Intrieri JM. 2003. Cloud Radiative Forcing of the Arctic Surface: The Influence of Cloud Properties, Surface Albedo, and Solar Zenith Angle. journal of climate, 17.
- Skamarock WC, Klemp JB, Dudhia J, Gill OD, D. BM, G. DM, Wang W et J. PG. 2008. A Description of the Advanced Research WRF Version 3. NCAR Technical Note NCAR/TN-475+STR.
- Stauffer DR et Seaman NL. 1990. Use of Four-Dimensional Data Assimilation in a Limited-Area Mesoscale model. Part I: Experiemnts with Synoptic-Scale Data. American Meteorological Society.

- Stephens G, Winker D, Pelon J, Trepte C, Vane D, Yuhas C, L'Ecuyer T et Lebsock M. 2018. CloudSat and CALIPSO within the A-Train: Ten Years of Actively Observing the Earth System. Bulletin of the American Meteorological Society, 99 : 569-581.
- Stroeve JC, Kattsov V, Barrett A, Serreze M, Pavlova T, Holland M et Meier WN. 2012. Trends in Arctic sea ice extent from CMIP5, CMIP3 and observations. Geophysical Research Letters, 39 : n/a-n/a.
- Sullivan RC, Petters MD, DeMott PJ, Kreidenweis SM, Wex H, Niedermeier D, Hartmann S, Clauss T, Stratmann F, Reitz P, Schneider J et Sierau B. 2010. Irreversible loss of ice nucleation active sites in mineral dust particles caused by sulphuric acid condensation. Atmospheric Chemistry and Physics, 10 : 11471-11487.
- Taylor JP, Glew MD, Coakley JA, Tahnk WR, Platnick S, Hobbs PV et Ferek RJ. 2000. Effects of Aerosols on the Radiative Properties of Clouds. Journal of the Atmospheric Sciences, 57 : 2656-2670.
- Taylor PC, Kato S, Xu K et Cai M. 2015. Covariance between Arctic sea ice and clouds within atmospheric state regimes at the satellite footprint level. Journal of Geophysical Research: Atmospheres.
- Twomey S. 1974. Polltion and the planeritary albedo. Atmospheric Environment.
- UNEP UNEP. 2011. Decoupling natural resource use and environmental impacts from economic growth, A Report of the Working Group on Decoupling to the International Resource Panel.
- UNEP UNEP. 2014. Managing and conserving the natural resource base for sustained economic and social development: A reflection from the International Resource Panel on the establishment of Sustainable Development Goals aimed at decoupling economic growth from escalating resource use and environmental degradation. Report of the International Resource Panel.
- Vali G. 1971. Quantitative Evaluation of Experimental Results and the Heterogeneous Freezing Nucleation of Supercooled Liquids. American Meteorological Society.
- Vali G. 1994. Freezing Rate Due to Heterofenous Nucleation. American Meteorological Society.
- Vali G. 2014. Interpretation of freezing nucleation experiments: singular and stochastic; sites and surfaces. Atmospheric Chemistry and Physics, 14 : 5271-5294.
- Vali G et Snider JR. 2015. Time-dependent freezing rate parcel model. Atmospheric Chemistry and Physics, 15 : 2071-2079.
- Vali G, DeMott PJ, Möhler O et Whale TF. 2015. Technical Note: A proposal for ice nucleation terminology. Atmospheric Chemistry and Physics, 15 : 10263-10270.

- Vincent WF. 2020. Arctic climate change: Local impacts, global consequences, and policy implications. Dans : The Palgrave handbook of Arctic policy and politics. Springer, p. 507-526.
- Wang Y, Liu X, Hoose C et Wang B. 2014. Different contact angle distributions for heterogeneous ice nucleation in the Community Atmospheric Model version 5. Atmospheric Chemistry and Physics, 14 : 10411-10430.
- Warneke C, Bahreini R, Brioude J, Brock CA, de Gouw JA, Fahey DW, Froyd KD, Holloway JS, Middlebrook A, Miller L, Montzka S, Murphy DM, Peischl J, Ryerson TB, Schwarz JP, Spackman JR et Veres P. 2009. Biomass burning in Siberia and Kazakhstan as an important source for haze over the Alaskan Arctic in April 2008. Geophysical Research Letters, 36.
- Warren SG, Hahn C.J., London J. CRM et Jenne R.L. 1988. Atlas of simultaneous occurrence of different cloud types over the ocean. National Center for Atmospheric Research.
- Welti A, Luond F, Stetzer O et Lohmann U. 2009. Influence of particle size on the ice nucleating ability of mineral dusts. Atmospheric Chemistry and Physics.
- Welti A, Lüönd F, Kanji ZA, Stetzer O et Lohmann U. 2012. Time dependence of immersion freezing: an experimental study on size selected kaolinite particles. Atmospheric Chemistry and Physics, 12 : 9893-9907.
- Westbrook CD et Illingworth AJ. 2013. The formation of ice in a long-lived supercooled layer cloud. Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society, 139 : 2209-2221.
- Wheeler MJ et Bertram AK. 2012. Deposition nucleation on mineral dust particles: a case against classical nucleation theory with the assumption of a single contact angle. Atmos Chem Phys, 12 : 1189-1201.
- Wiedinmyer C, Akagi SK, Yokelson RJ, Emmons LK, Al-Saadi JA, Orlando JJ et Soja AJ. 2011. The Fire INventory from NCAR (FINN): a high resolution global model to estimate the emissions from open burning. Geoscientific Model Development, 4 : 625-641.
- Wild O, Zhu X et J. PM. 2000. Fast-J: Accurate Simulation of In- and Below-Cloud Photolysis in Tropospheric Chemical Models. journal of Atmospheric Chemistry.
- Winker DM, Vaughan MA, Omar A, Hu Y, Powell KA, Liu Z, Hunt WH et Young SA. 2009. Overview of the CALIPSO Mission and CALIOP Data Processing Algorithms. Journal of Atmospheric and Oceanic Technology, 26 : 2310-2323.
- Wright TP et Petters MD. 2013. The role of time in heterogeneous freezing nucleation. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 118 : 3731-3743.

- Wyser K. 2005. Modeled and observed clouds during Surface Heat Budget of the Arctic Ocean (SHEBA). Journal of Geophysical Research, 110.
- Yang F, Tan J, Zhao Q, Du Z, He K, Ma Y, Duan F, Chen G et Zhao Q. 2011. Characteristics of PM2.5 speciation in representative megacities and across China. Atmospheric Chemistry and Physics, 11 : 5207-5219.
- Young KC. 1974. A Numerical Simulation of Wintertime, Orographic Precipitation: Part I. Description of Model Microphysics and Numerical Techniques. Journal of Atmospheric Sciences, 31.
- Zaveri RA et Peters LK. 1999. A new lumped structure photochemical mechanism for large-scale applications. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 104 : 30387-30415.
- Zaveri RA, Easter RC, Fast JD et Peters LK. 2008. Model for Simulating Aerosol Interactions and Chemistry (MOSAIC). Journal of Geophysical Research, 113.
- Zhang J, Xue W, Zhang M, Li H, Zhang T, Li L et Xin X. 2014. Climate impacts of stochastic atmospheric perturbations on the ocean. International Journal of Climatology, 34 : 3900-3912.
- Zhao C et Garrett TJ. 2015. Effects of Arctic haze on surface cloud radiative forcing. Geophysical Research Letters, 42 : 557-564.