

Université de Montréal

**Caractérisation des propriétés chimiques, physiques et
optiques des matières particulaires atmosphériques dans le
Grand Nord canadien**

par

Samantha Tremblay

Département de Chimie

Faculté des Arts et des Sciences

Mémoire présenté à la Faculté des études supérieures et postdoctorales
en vue de l'obtention du grade Maître ès sciences (M.Sc.) en Chimie

Décembre, 2017

© Samantha Tremblay, 2017

Résumé

Les aérosols atmosphériques, c'est-à-dire les matières particulaires, sont une source importante d'incertitudes dans les modèles climatiques. En raison de cette incertitude, il est important d'analyser la corrélation entre la composition, les propriétés physiques (par exemple la taille des particules) et les propriétés optiques des aérosols atmosphériques en utilisant différents instruments. Dans l'Arctique, l'impact du changement climatique se fait ressentir de façon plus rapide que la moyenne mondiale, d'où ce problème souligne le besoin important d'effectuer des mesures atmosphériques dans cette région. À cette fin, des mesures sur le terrain en rapport avec la composition des aérosols atmosphériques sont actuellement effectuées au Laboratoire de Recherche Atmosphérique sur l'Environnement Polaire (PEARL) à Eureka, au Nunavut (80N, 86O), afin de caractériser les aérosols dans le Grand Nord canadien. Les instruments déployés comprennent deux PAX (*Photoacoustic Extinctionmeters*), qui mesurent la diffusion de la lumière et l'absorption des aérosols à 870 nm et 405 nm, ensuite un spectromètre de masse, appelé aussi AMS (*Aerosol Mass Spectrometer*), puis un OPC (*Optical Particle Counter*) et finalement un SMPS (*Scanning Mobility Particle Sizer*). En utilisant les données obtenues de ces instruments, qui sont opérationnels depuis août 2015 jusqu'en date d'aujourd'hui, il est possible d'observer des changements dans la distribution de la taille des aérosols et de leur concentration, en plus de changements concomitants dans leurs caractéristiques optiques.

Plus particulièrement, les mesures actuelles des aérosols fournissent des observations à long terme sur la distribution de la taille des aérosols dans l'Arctique pour les deux modes extrêmes, soit pour les fines et grosses particules. Des événements sur le grossissement des particules ont été fréquemment observés pendant l'été 2015 et l'été 2016. Cependant, d'autres événements à long terme peuvent être observés au courant de l'année, comme l'événement d'une plume de pollution, ou même le phénomène de brume arctique qui se produit chaque hiver dans le Grand Nord canadien.

Mots-clés : Aérosol atmosphérique, matière particulaire (PM), Arctique, Eureka, PEARL, analyses d'évènements de grossissement, PAX, AMS, OPC, SMPS.

Abstract

Atmospheric aerosols, i.e. particulate matter (PM), are a major source of uncertainty in climate models. Due to this uncertainty, it is important to analyze the correlation between the composition, the physical properties (e.g. particle size) and the optical properties of atmospheric aerosols using different instruments. In the Arctic, climate change is much more rapid than the global mean, highlighting the important need for atmospheric measurements in this region. To this end, field measurements of the composition of atmospheric aerosols are currently being performed at the Polar Atmospheric Environment Research Station (PEARL) in Eureka, Nunavut (80N, 86W) to characterize aerosols in the Canadian High Arctic. The instruments deployed include two PAXs (Photoacoustic Extinctionmeters) that measure aerosol light scattering and absorption at 870 nm and at 405 nm, an AMS (Aerosol Mass Spectrometer), an OPC (Optical Particle Counter) and a SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer). Using the data obtained from these instruments, which have been operational since August 2015, it is possible to observe changes in aerosol size distributions and aerosol concentrations as well as concomitant changes in the optical characteristics of aerosols.

More specifically, the current aerosol measurements provide long-term observations of Arctic aerosol size distributions for both coarse and fine modes. Particle growth events were frequently observed during the summers of 2015 and 2016. In addition, other long-term events can be seen throughout the years, like long-rang transport of a pollution plume, or the arctic haze, occurring every winter in the Canadian High Arctic.

Keywords : Atmospheric aerosol, particulate matter (PM), Arctic, Eureka, PEARL, analyses growths events, PAX, AMS, OPC, SMPS.

Table des matières

Résumé.....	ii
Abstract.....	iii
Table des matières.....	iv
Liste des tableaux.....	vii
Liste des figures	viii
Liste des abréviations.....	xi
Remerciements.....	xiv
Chapitre 1 - Introduction.....	1
1.1. Matières particulaires atmosphériques.....	2
1.1.1. Composition et terminologie.....	2
1.1.2. Les aérosols et la santé humaine.....	4
1.1.3. Les aérosols et leurs impacts sur le climat.....	5
1.2. Instrumentations.....	8
1.2.1. <i>Scanning Mobility Particle Sizer</i> (SMPS)	9
1.2.1.1. <i>Differential Mobility Analyser</i> (DMA).....	11
1.2.1.2. <i>Condensation Particle Counter</i> (CPC).....	12
1.2.2. <i>Optical Particle Counter</i> (OPC).....	13
1.2.3. <i>Aerosol Mass Spectrometer</i> (AMS).....	14
1.2.4. Radiosonde.....	17
1.2.5. <i>Photoacoustic Extinctionmeters</i> (PAX).....	17
1.2.5.1. Analyse du carbone noir en Arctique.....	19
1.3. Travail de terrain en Arctique	21
1.3.1. Les sites de recherche à Eureka et à Alert	21
1.3.2. Les particularités de l'Arctique.....	22
1.3.2.1. Formation et composition des particules dans la nucléation des nuages	26
1.4. L'objectif du projet de recherche	28
1.5. Références (Chapitre 1)	30

Chapitre 2 - Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016	35
2.1. Préface.....	36
2.2. Article	37
2.2.1. Abstract.....	37
2.2.2. Introduction.....	38
2.2.3. Experimental.....	41
2.2.3.1. Field Site Information and Aerosol Sizing Instrumentation	41
2.2.3.2. Aerosol Mass Spectrometer	42
2.2.3.3. Meteorological Data.....	43
2.2.3.4. Back-Trajectory Analysis	43
2.2.4. Results and Discussion	44
2.2.4.1. Summertime Aerosol Size Distributions	44
2.2.4.2. Observations at Eureka and Alert	44
2.2.4.3. Case Studies of Aerosol Growth Events.....	49
2.2.4.4. Back-Trajectory Analysis	52
2.2.4.5. Aerosol Bulk and Size Resolved Chemical Composition.....	53
2.2.5. Conclusions.....	58
2.2.6. Acknowledgements.....	59
2.2.7. Supporting information.....	60
2.2.8. References (Chapitre 2)	70
Chapitre 3 - Développement d'une méthode de calibration et utilisation de PAX en Arctique	78
3.1. Développement de la méthode de calibration.....	79
3.2. Utilisation de PAX en Arctique	79
3.2.1. Installation des PAX à Eureka	80
3.2.2. Résultats et discussion	81
3.2.3. Conclusion	85
3.3. Références (Chapitre 3)	86
Chapitre 4 - Conclusion générale et perspectives	87
4.1. Retour sur les objectifs et les résultats du projet.....	88

4.2. Perspectives.....	89
4.3. Référence	91
Annexe	i
Section A – Rapide aperçu de l’analyse des résultats pour le SMPS, l’OPC et le PAX	ii
I. Analyse des résultats pour le SMPS	ii
II. Analyse des résultats pour le OPC.....	v
III. Analyse des résultats pour le PAX.....	viii
Section B – Manuel de calibration des PAX	xii

Liste des tableaux

Table 2-1 Particle growth rates for five growth events during the summers of 2015 and 2016.	49
Table 2-2 List of all growth events observed near Eureka during the summers of 2015 and 2016.	60

Liste des figures

Figure 1-1 Processus chimiques et physiques des aérosols atmosphériques.	3
Figure 1-2 Identification de la taille des PM à l'aide d'un cheveu humain et d'un grain de sable fin.	5
Figure 1-3 Estimé du forçage radiatif global moyen des aérosols atmosphériques depuis 1750.	6
Figure 1-4 Effet des aérosols atmosphériques sur l'albédo des nuages et de leur durée de vie. 8	
Figure 1-5 Schéma illustrant les composantes d'un <i>Scanning Mobility Particle Sizer</i> (SMPS).	10
Figure 1-6 Schéma illustrant les composantes d'un DMA.	11
Figure 1-7 Schéma illustrant les composantes d'un CPC.	12
Figure 1-8 Schéma illustrant les composantes d'un OPC.	14
Figure 1-9 Schéma illustrant la composition d'un AMS.	16
Figure 1-10 Schéma illustrant les composantes de la cellule dans un PAX.	18
Figure 1-11 Sources d'aérosols de carbone noir et d'espèces co-émises.	20
Figure 1-12 Disposition des instruments utilisés à Eureka, à l'intérieur de la station PEARL. 21	
Figure 1-13 Représentation des changements de températures sur la planète entre 1964 et 2014.	23
Figure 1-14 Représentation du courant des vents sur la planète (A) et du transport saisonnier des aérosols analysés en Arctique durant l'hiver (B) et l'été (C).	24
Figure 1-15 Production d'aérosols sulfate par photooxydation du diméthyle sulfure (DMS). 26	
Figure 1-16 Nucleation des nuages selon la taille des particules.	27
Figure 2-1 The size resolved particle concentration measured by SMPS instruments during summer 2016 in Alert (a) and at the PEARL RidgeLab (b) in the Canadian Arctic Archipelago.	45
Figure 2-2 Total particle number concentrations measured at the PEARL RidgeLab near Eureka and in Alert during summer 2016 for sizes between 10 – 487 nm (a). Scatter plot showing the correlation of the particle number concentrations measured in Alert and near Eureka (b). The data in the scatter plot correspond to particle diameters between 20 and 70 nm.	46

Figure 2-3 Aerosol mass spectrometry measurements of aerosol composition taken at the PEARL RidgeLab near Eureka (a). The total concentration of non-refractory PM₁ aerosol measured by the mass spectrometer is also compared against the total PM₁ concentration measured by the SMPS and OPC, and exhibits good agreement with a linear regression analysis yielding a slope of 1.16 and a correlation coefficient of 0.89 (b). In addition, the size resolved particle concentration measured by SMPS instruments during summer 2015 in Alert (c) and at the PEARL RidgeLab (d) are shown in the bottom two panels. All data are plotted on the same time scale. 47

Figure 2-4 Box and whiskers plots of the total particle number concentrations (for diameters between 10 – 487 nm) measured during summer 2015 and during summer 2016 in Alert and at the PEARL RidgeLab near Eureka. The data plotted correspond to the period of 27 July to 9 September for both years. The plots indicate the 10th, 25th, 50th, 75th and 90th percentiles. 48

Figure 2-5 Five selected growth events near Eureka; the grey dashed line indicates the start of the growth event (a, c, e, g, i). In the right column, vertical temperature profiles every 12h during growth events are shown, including one day prior (24h) to the start of the growth event (b, d, f, h, j). 50

Figure 2-6 Histogram of the number of growth events near Eureka, binned by the average change in the temperature from 10 to 600 m above sea level. The average temperature change of each event is provided in Table 2-2, and is calculated from radiosonde measurements, as shown in Figure 2-5. 51

Figure 2-7 Size-resolved aerosol chemical composition for GE 3 (a, c, e) and GE 6 (b, d, f) measured near Eureka. The absolute organic and sulfate aerosol mass concentration (a, b), the corresponding mass fractions (c, d), and the nitrate-equivalent mass concentration of the m/z 43 and 44 fragments (e, f) are shown for each growth event. The data for m/z 44 is not shown below 100 nm due interference from gaseous CO₂. 55

Figure 2-8 Scatter plot of the organic aerosol fraction measured at m/z 43 versus that measured at m/z 44 during GE 3 (a) and GE 6 (b) near Eureka. Also shown are the average values corresponding to the first seven and final seven hours of the growth event. 56

Figure 2-9 Inlet particle transmission efficiency for the AMS (a) and SMPS (b) at the PEARL RidgeLab. 61

Figure 2-10 Scatter plots of the particle number concentrations measured by the SMPS (300 – 487 nm) and the OPC (300 – 500 nm) near Eureka for the summers of 2015 (a) and 2016 (b). 62

Figure 2-11 SMPS measurements of each growth event observed near Eureka during the summers of 2015 and 2016 as summarized in Table 2-2 and GE 3 at Alert. 63

Figure 2-12 Evaluation of the air mass history during the six selected growth events summarized in Table 2-1 and shown in Figure 2-5 of the main text. The back-trajectory and potential emissions sensitivity are calculated using FLEXPART. 66

Figure 2-13 AMS average ambient aerosol mass spectrum of GE 3 (a) and GE 6 (b) compared with the mass spectrum of MSA (c). 67

Figure 2-14 Photos from the PEARL RidgeLab, at 610 m above sea level. The images correspond to: the first observed growth event for 2016 (25 June), the first time open water is observed (14 July), the last observed growth event for 2016 (10 September), and the last image available for the year (28 September) due to poor visibility related to meteorological conditions as well as polar sunset. 68

Figure 2-15 Average by month of the downwelling shortwave radiation for the year 2016 at Eureka, as measured at the SAFIRE facility at 85 m above sea level. The standard deviation of the one-minute average fluxes for each month is indicated along with the average. 69

Figure 3-1 Comparaisons des mesures obtenues par le PAX 405 nm (bleu) et le PAX 870 nm (rouge) pour les données de diffusions (A) et d’absorbance (B) de la lumière. 82

Figure 3-2 Corrélation entre les coefficients de diffusion et d’absorption mesurée par le PAX 405 nm (A) et le PAX 870 nm (B). 83

Figure 3-3 Percentiles des données principales obtenues par le PAX 405 nm et le PAX 870 nm. 84

Liste des abréviations

AMS: *Aerosol Mass Spectrometer*

B_{abs}: Coefficient d'absorption de la lumière

B_{scat}: Coefficient de diffusion de la lumière

BC: Carbone noir (*Black Carbon*)

BC MAC: Section transversale d'absorption de masse de carbone noir (*Black Carbon Mass Absorption Cross-Section*)

CCN: Noyau de condensation (*Cloud Condensation Nuclei*)

CPC: *Condensation Particle Counter*

DMA: *Differential Mobility Analyser*

DMT: *Droplet Measurement Technologies*

ECCE: Environnement et Changement Climatique Canada (*Environment and Climate Change Canada*)

EI: Impacte électronique (*Electron Impact*)

MS: Spectromètre de masse (*Mass Spectrometer*)

OA: Aérosols Organiques (*Organic Aerosol*)

OPC: *Optical Particle Counter*

PAX: *Photoacoustic Extinctionmeters*

PAX 405 nm : PAX contenant un laser à une longueur d'onde de 405 nm

PAX 870 nm : PAX contenant un laser à une longueur d'onde de 870 nm

PEARL: Laboratoire de Recherche Atmosphérique sur l'Environnement Polaire (*Polar Atmospheric Environment Research Laboratory*)

PM: Matière particulaire (*Particulate Matter*)

PM₁₀: Matière particulaire ayant un diamètre de 10 µm ou moins

PM_{2.5}: Matière particulaire ayant un diamètre de 2.5 µm ou moins

POA: Aérosols organiques primaires (*Primary Organic Aerosol*)

PToF: Temps de vol des particules (*Particle Time of Flight*)

SMPS: *Scanning Mobility Particle Sizer*

SOA: Aérosols organiques secondaires (*Secondary Organic Aerosol*)

SP2: *Single Particle Soot Photometer*

SSA: Albédo à diffusion unique (*Single Scattering Albedo*)

UTC: Temps universel coordonné

VOC: Composés organiques volatiles (*Volatile Organic Compounds*)

À ma famille et mon amoureux Mathieu

Remerciements

J'aimerais tout d'abord remercier mon directeur de recherche, Patrick L. Hayes, de m'avoir donné une opportunité aussi unique et extraordinaire de travailler dans son laboratoire de recherche, pour dire j'en ai vécu des choses qui sortent complètement de l'ordinaire et que personne d'autre que lui n'aurait pu m'arriver avec des « crazy ideas » aussi spéciales pour un simple travail de recherche à la maîtrise. Aller en Arctique 3 fois en deux ans, en plus d'aller faire des conférences un peu partout, comme Toronto ou la France, ce n'est pas donné à tout le monde. Grâce à ces expériences, autant mon anglais a continué à s'améliorer de plus en plus, que maintenant je suis devenue une experte en voyage autant en avion qu'en train ! Et dire qu'avant je n'avais jamais voyagé avant la fin de mon Baccalauréat, la vie est faite de surprise et celle-ci était une des meilleures. Donc, pour cette merveilleuse aventure et le meilleur support qu'un professeur peut donner à ces étudiants de recherche, je le remercie énormément.

Ensuite, j'aimerais remercier l'incroyable équipe travaillant à la station météorologique à Eureka et aux chercheurs rencontrés là-bas pour le support et l'aide apportée. Un merci spécial à Pierre, Mike, Peter, Flora et John pour m'avoir permis de vivre cette agréable et indescriptible expérience et de s'occuper aussi gentiment des instruments à Eureka, malgré les conditions spéciales de l'Arctique et aussi à m'avoir fait découvrir les environs d'Eureka et un de ces trésors cachés, les « Rose Rock ».

J'aimerais également remercier tous les membres du laboratoire, qui m'ont aidé à mon projet et qui ont contribué à la bonne ambiance quotidienne : Lorena Torres, Prettiny Ma, Jake (Jacob Sommers), Jill Bachelder, Jean-Christophe Picard, Carolyn Liu-Kang et Andy Vicente-Luis.

Je voudrais dire merci aussi à mes ami(e)s rencontrés au baccalauréat en chimie qui m'ont aidés à surmonter plusieurs épreuves et m'avoir permis de passer la meilleure expérience possible pour des études universitaires : Sarah, Gen, Audrey, Éliane, Kevin et Alessa, et aussi à mes ami(e)s hors université : Éric, Kyky, Mini, Alex et Lolo.

Mais bon, je ne pourrais pas finir ces remerciements sans mettre en lumière toute l'aide précieuse que m'ont apportée mes parents, Lucie et Jacques, et aussi à mes frères et sœurs,

Louka, Sarah, Marilyn et Alexandre, puis sans compter l'homme de ma vie Mathieu Hébert, cette aide est juste indescriptible et je ne peux mettre de mots, merci beaucoup !

Je me rends compte maintenant que ça en fait du monde pour juste une simple personne, mais c'est sûr qu'après autant d'années d'études et avec autant de haut et de bas, qu'il est important d'avoir un bon entourage pour réussir à arriver à ses buts dans la vie et je vous promets à tous que je vais y arriver « être professeur de cégep » et que grâce à vous je vais pouvoir aider autant de monde que je le peux, comme vous m'avez aider à arriver jusque-là !

Chapitre 1 - Introduction

1.1. Matières particulaires atmosphériques

1.1.1. Composition et terminologie

Les matières particulaires (*Particulate Matter* en anglais, PM) peuvent être définies comme étant le mélange ou l'accumulation d'aérosols atmosphériques, d'où ces derniers sont des particules solides ou liquides qui sont suspendues dans l'atmosphère et ont un diamètre variant de 0.01 à 10 μm . Les aérosols en général peuvent être classifiés par leurs propriétés physiques, comme leurs tailles et leurs formes, et leurs propriétés chimiques, comme leurs compositions chimiques. Ainsi, les PM peuvent être distinguées par leurs tailles, qui varient dans le domaine du micromètre (μm) et par leurs compositions pouvant être variées, composées d'un mélange complexe de matières organiques et inorganiques ou pures.

De façon plus précise, la Figure 1-1 démontre un résumé des processus chimiques et physiques que les aérosols atmosphériques peuvent subir selon leurs concentrations (en cm^{-3}) et leurs tailles (nm). Cette figure permet d'apercevoir en premier les quatre différents modes que peut avoir une particule, selon son diamètre. Le premier est le « *nucleation mode* » correspondant aux particules ayant un diamètre plus petit que 0.01 μm (10 nm), dont les précurseurs principaux sont des constituants de plusieurs gaz émis dans l'atmosphère tels que l'acide sulfurique, l'ammoniaque et les composés organiques volatils (VOC).¹⁻² Les particules de ce mode peuvent changer de taille et de composition en subissant des réactions de condensation ou de coagulation avec d'autres particules, formant de la sorte des particules fines avec un plus grand diamètre, donc en formant les particules du second mode, soit le « *Aitken mode* ». Les particules du second mode ont un diamètre entre 10 et 100 nm (0.01 – 0.1 μm) et proviennent généralement du grossissement des particules de diamètres inférieurs, ou bien de la coagulation et condensation des composés de SOA (aérosol organique secondaire) principalement. Ensuite viennent les particules du troisième mode, soit l'« *Accumulation mode* », ayant un diamètre entre 100 et 1000 nm (0.1 – 1 μm). Ces particules proviennent généralement des particules du second mode ou bien de la condensation des VOC, donc directement des POA (aérosol organique primaire) et des SOA. Il est à noter que les POA sont des aérosols directement émis dans l'atmosphère, soit par des moteurs de voitures, de la cuisson ou des phénomènes naturels/biogéniques, comparativement au SOA qui sont des aérosols résultants de diverses

réactions chimiques survenues dans l'atmosphère, telles que la condensation, la nucléation ou l'oxydation, ainsi leurs différences se trouvent au niveau de leurs provenances.³ Finalement vient le dernier mode, soit le « *Coarse mode* », ayant un diamètre entre 1000 et 10000 nm. Ce dernier mode est généralement le résultat du grossissement de particules de plus petit diamètre, ou bien directement d'émission de tout genre venant de la surface de la terre, comme des débris végétaux, de la poussière, des embruns marins ou bien même d'émission volcanique qui sont directement envoyés dans l'atmosphère grâce à l'action des vents sur la surface de la terre.¹

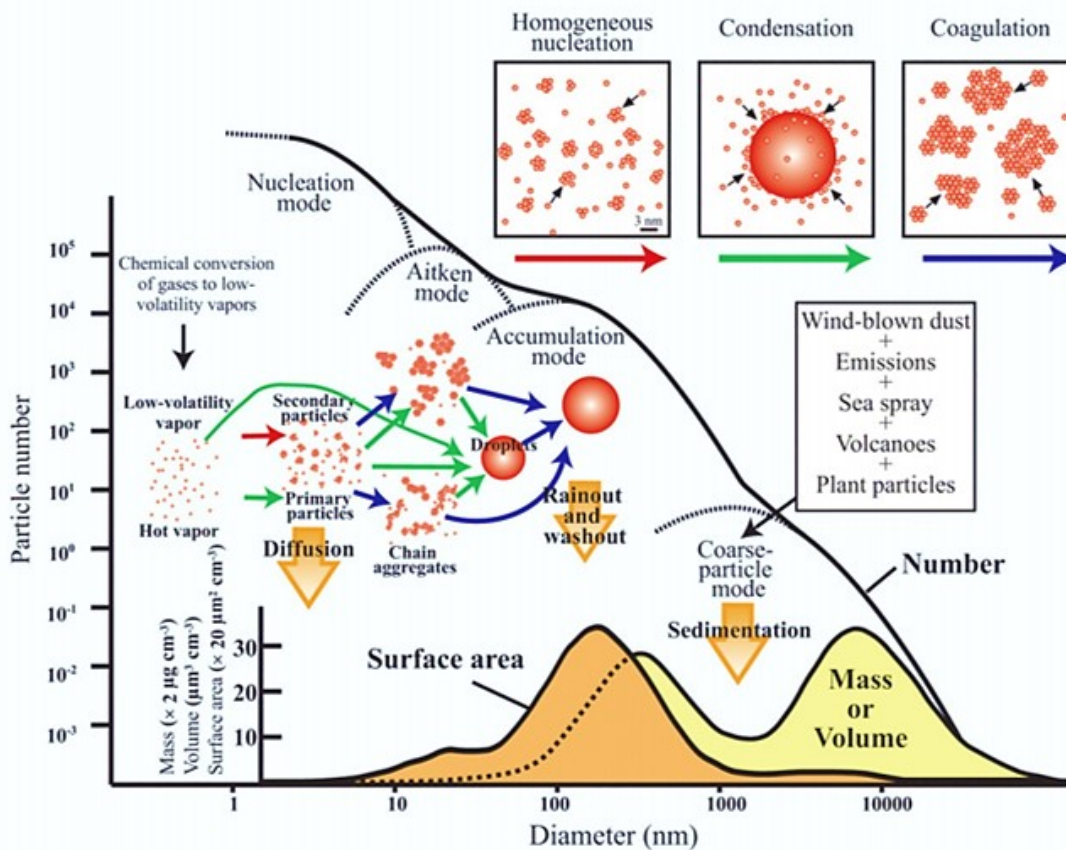


Figure 1-1 Processus chimiques et physiques des aérosols atmosphériques.
 Figure provenant de Buseck et al.⁴

Toutefois, il est à noter que les aérosols sont éliminés de l'atmosphère selon deux mécanismes, soit par déposition « sèche » ou « mouillée ». Cette déposition dépend des conditions météorologiques, de la taille et la phase dans laquelle se retrouvent les particules. De manière plus précise, la déposition « sèche » se produit lorsque les particules se déposent directement sur le sol, suite à un processus prenant plusieurs jours ou semaines. Cette sorte de déposition se produit généralement avec les aérosols ayant un grand diamètre, soit les particules

étant dans le « *Coarse mode* », en raison de leurs grandes tailles, les particules demeurent moins longtemps en suspension dans l'atmosphère, puisqu'ils ont une vitesse de sédimentation plus élevée que celle des particules fines. Pour la déposition « mouillée », celle-ci se produit lorsque les particules sont condensées avec l'eau dans l'air, afin de former des gouttelettes d'eau dans les nuages et par la suite, ces gouttelettes d'eau retombent au sol sous forme de pluie ou d'autres précipitations.⁵ Ainsi, le mécanisme de déposition le plus important dans l'« Accumulation mode » est les dépositions mouillées (soit en anglais « *wet-deposition* »), car celles-ci sont constituées de plus petites particules, comparativement aux dépositions sèches, qui sont plus lentes. De plus, les particules les plus susceptibles de se condenser en gouttelettes d'eau sont les particules du « Aitken mode », comme démontré dans la Figure 1-1.

1.1.2. Les aérosols et la santé humaine

Selon des études faites au cours des derniers siècles, à la suite de plusieurs épisodes de pollution atmosphérique sévère, causés par des activités anthropogéniques, les résultats ont démontré une augmentation significative du taux de mortalité et de maladies reliées à cette pollution.⁶ De manière plus précise, selon le bilan environnemental annuel sur la qualité de l'air à Montréal publié en 2014, les principaux polluants qui contribuent à la mauvaise qualité de l'air seraient les PM_{2.5} (matière particulaire ayant un diamètre inférieur à 2.5 µm) et l'ozone.⁷ Cette augmentation dans l'impact des PM_{2.5} sur la pollution et la santé humaine ne s'applique évidemment pas seulement à Montréal, mais partout autour du globe où il y a un développement industriel important et une augmentation dans l'utilisation d'automobiles.⁸⁻¹²

Pour comprendre comment les PM peuvent aller directement dans le corps humain, mieux vaut les définir. Ainsi, en se référant à la Figure 1-2, un cheveu a un diamètre d'environ 50 à 70 µm, soit 5 à 7 fois la grosseur qu'un PM₁₀ (matière particulaire ayant un diamètre inférieur à 10 µm) et d'où les PM₁₀ sont 4 fois la grosseur d'un PM_{2.5}. Cet indice de grandeur des PM_{2.5} explique en grande partie comment ils se retrouvent facilement dans le corps humain. Mais de manière plus précise, les PM_{2.5}, se trouvant dans l'air, sont inhalées par l'être humain, pour ensuite être déposées dans les alvéoles pulmonaires, pour finalement finir dans le sang. Ainsi, le système respiratoire et cardio-vasculaire peuvent être perturbés, causant de

l'athérosclérose, des accidents vasculaires cérébraux, ou même des infarctus.¹³ De plus, suite à des recherches approfondies sur la corrélation entre l'espérance de vie et la concentration en $PM_{2.5}$ dans plusieurs villes des États-Unis (ex. Boston, Topeka et Steubenville), fait par Pope et al.¹⁴⁻¹⁶, il a été démontré que les PM augmentent la probabilité de développer des maladies cardio-vasculaires. Pour faire suite, Pope et al.¹⁴⁻¹⁶ ont effectués une recherche inverse avec les mêmes villes, afin de valider leur recherche et le verdict est tel que pour une période plus récente, l'espérance de vie avait augmenté et la concentration en $PM_{2.5}$ avait diminué.

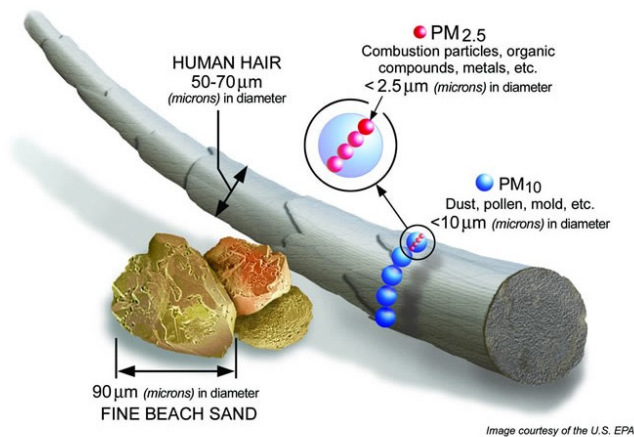


Figure 1-2 Identification de la taille des PM à l'aide d'un cheveu humain et d'un grain de sable fin.
Figure provenant d'Environmental Protection Agency (EPA).¹⁷

1.1.3. Les aérosols et leurs impacts sur le climat

Les aérosols ont un impact sur le climat de manière directe et indirecte, tout dépendamment de leurs compositions et de leurs propriétés optiques. Premièrement, les aérosols peuvent avoir un impact direct sur le climat lorsqu'ils sont exposés directement aux rayons solaires. Un bon exemple d'un impact direct des aérosols sur le climat serait le carbone noir, celui-ci absorbe les rayons solaires, ce qui engendre un réchauffement de l'atmosphère, qui peut être traduit par un forçage radiatif positif. Ceci se produit aussi lorsque le carbone noir, après transportation dans l'atmosphère, se dépose sur la neige et la glace causant une diminution de l'albédo de la surface, soit une diminution de la réflectivité de la neige et la glace en Arctique par exemple.¹⁸ Il est à noter que l'albédo se définit comme étant le pouvoir réfléchissant d'une surface, soit le rapport de l'énergie lumineuse réfléchie à l'énergie lumineuse incidente. Cependant, comme le présente

l'IPCC (*Intergovernmental Panel on Climate change*)¹⁹ dans la Figure 1-3 (dans la section « *aerosols and precursors* »), il existe des aérosols pouvant effectuer un forçage radiatif négatif (un refroidissement), comme le sulfate, le nitrate, les poussières minérales et les OA (aérosols organiques). Ainsi, il existe des aérosols pouvant aider au balancement de la température et non juste au réchauffement de la planète, comme le démontrent les deux premières sections de la Figure 1-3 avec les gaz à effet de serre et une partie des aérosols et gaz ayant un court temps de vie. Il est à noter qu'en climatologie, le forçage radiatif est approximativement défini comme étant la différence entre l'énergie radiative reçue et l'énergie radiative émise par un système climatique donné. Donc, un forçage radiatif positif tend à réchauffer le système (plus d'énergie reçue qu'émise), alors qu'un forçage radiatif négatif va dans le sens d'un refroidissement (plus d'énergie perdue que reçue).

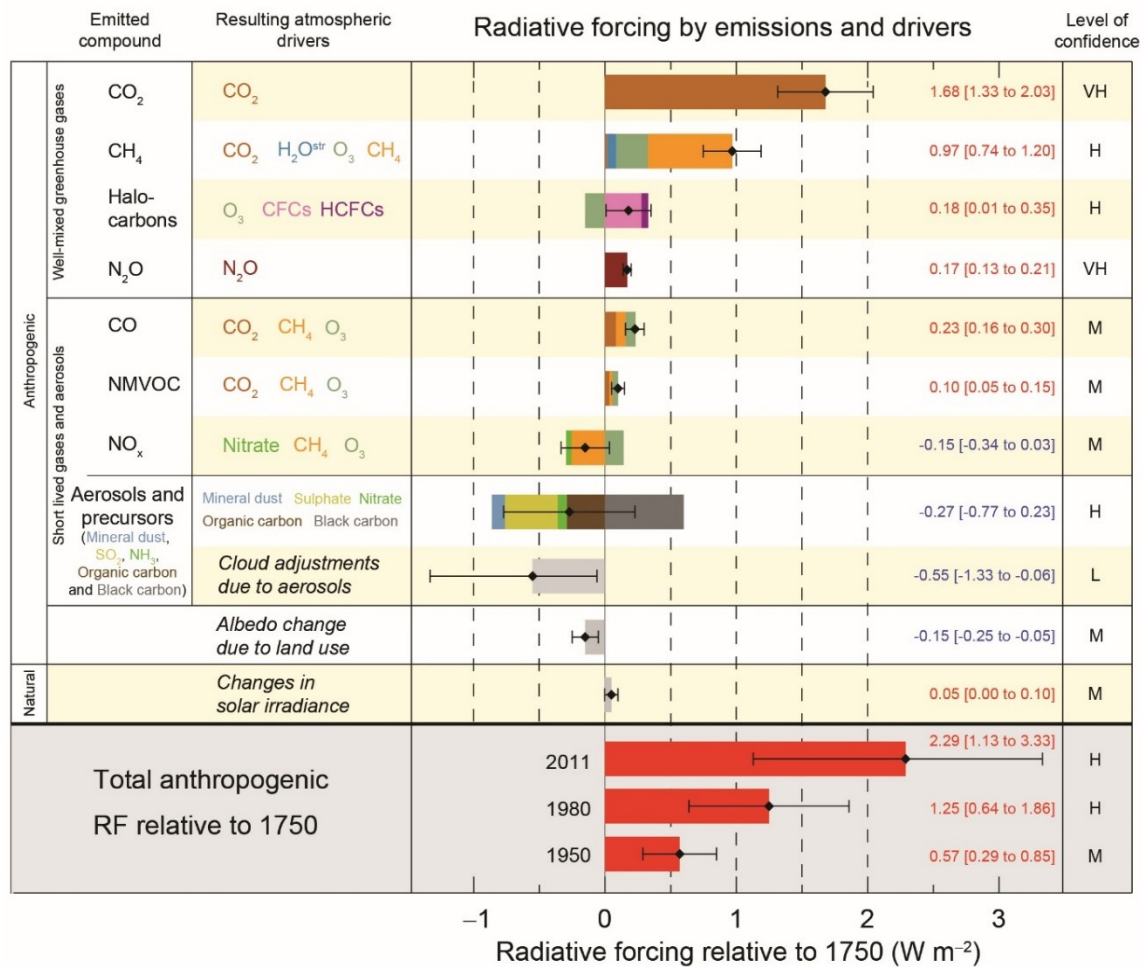


Figure 1-3 Estimé du forçage radiatif global moyen des aérosols atmosphériques depuis 1750.

Figure provenant du rapport de l'IPCC fait en 2013.¹⁹

Ensuite, l'effet indirect des aérosols sur le climat pourrait se traduire par l'interaction de ceux-ci avec les nuages, comme il est démontré dans la Figure 1-3 et Figure 1-4, d'où l'on aperçoit l'ajustement des nuages causé par les aérosols. Cet ajustement et cette grande incertitude que l'on peut apercevoir sont dus principalement à la composition complexe des aérosols, ce qui varie énormément d'un environnement à une autre. De la sorte, lorsque l'on regarde les aérosols et les nuages, plusieurs facteurs sont nécessaires afin de comprendre leur interaction dans l'environnement causant un forçage radiatif varié. Premièrement, à la base, un nuage peut se former à l'aide d'un noyau de nucléation, soit une particule dans l'atmosphère, qui va condenser l'eau afin de créer des gouttelettes d'eau formant ainsi un nuage. Cependant, selon la nature de cette particule, l'albédo du nuage change.

Toutefois, avant d'aller plus loin dans l'impact des aérosols dans l'atmosphère, il faut se rappeler que la loi de Beer-Lambert ($\frac{I(z)}{I_0} = e^{-b_{ext}z}$) décrit l'atténuation de la lumière qui passe à travers d'un médium, qui peut être traduite par le coefficient d'extinction ($b_{ext} = b_{scat} + b_{abs}$), qui est égale à la somme du coefficient d'absorbance et de diffusion d'un médium. Par cette loi, il est possible de calculer l'albédo à diffusion unique (SSA, ou en anglais « *Single Scattering Albedo* »), en divisant le coefficient de diffusion par le coefficient d'extinction, dont cette mesure permet d'indiquer l'importance de la diffusion par rapport à l'absorption. Ainsi, en regardant la différence dans l'albédo d'un nuage à un autre, il est possible de distinguer si celui-ci est un nuage pollué avec un albédo plus élevé ou non. De manière plus précise, en regardant la Figure 1-4, la formation d'un nuage normal forme de plus grandes gouttelettes d'eau contrairement à un nuage pollué, ce qui engendre, pour un nuage pollué, moins de précipitations, car pour une même quantité d'eau qu'un nuage régulier, les nuages sous l'influence d'une concentration élevée de noyaux de condensation (CCN, soit en anglais *Cloud Condensation Nuclei*) forment de plus petites gouttelettes. Ceci induit que pour atteindre la taille requise pour précipiter, il faudra qu'un CCN accumule plus d'eau pour faire précipiter ces gouttelettes comparativement à un nuage régulier, et ainsi la précipitation d'un CCN prendra plus de temps, ce qui explique pourquoi ce type de nuage reste plus longtemps dans l'atmosphère. Ainsi, pour un nuage pollué, la durée de vie dans l'atmosphère est augmentée, causant une accentuation du refroidissement du climat par les nuages.²⁰ De plus, la présence de particules peut augmenter l'albédo du nuage, ce qui induit une diminution du rayonnement solaire à la surface.

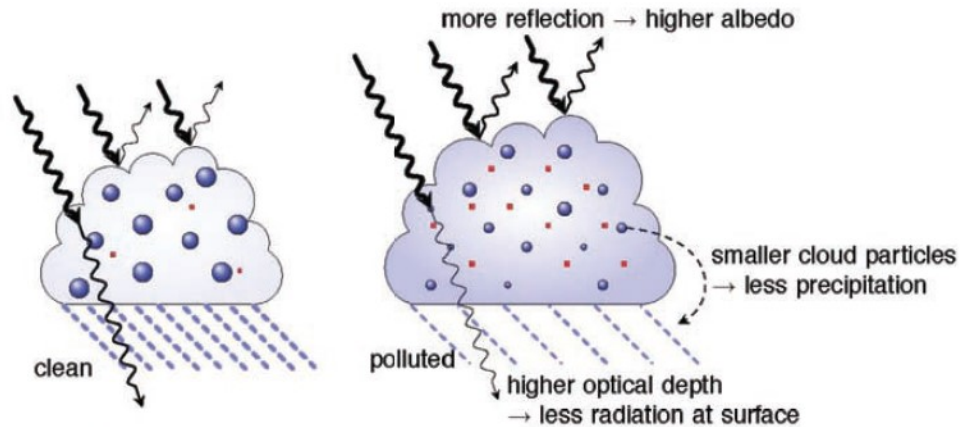


Figure 1-4 Effet des aérosols atmosphériques sur l'albédo des nuages et de leur durée de vie.
Figure provenant du rapport de l'IPCC fait en 2013.¹⁹

De la sorte, il est important de prendre en considération les interactions aérosols-nuage, afin de prévoir ce qui va se produire ensuite dans l'atmosphère une fois que les nuages se forment. Cependant, les recherches sur ce domaine sont encore très vagues sachant que les aérosols contiennent plusieurs espèces de particules et donc la détermination des effets indirects liés au nuage reste, encore à ce jour, une énorme incertitude sur les modèles climatiques. Ainsi, les recherches effectuées au cours de ce projet vont dans ce sens caractériser les propriétés chimiques, physiques et optiques de ces matières particulaires atmosphériques dans le Grand Nord canadien au cours de l'été 2015 et 2016.

1.2. Instrumentations

Dans le cadre de ce projet, plusieurs instruments ont été utilisés afin de caractériser les propriétés chimiques, physiques et optiques des matières particulaires atmosphériques dans le Grand Nord canadien. Dans cette section, seules la description des instruments et leurs applications seront décrites, leur installation dans la station de recherche en Arctique va être décrite dans la Section 1.3.1.

1.2.1. *Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS)*

Afin de caractériser les propriétés chimiques et physiques des aérosols atmosphériques, il est important de choisir un appareil pouvant donner des informations de manière quantitatives en temps réel sur la distribution de la taille des particules analysées en fonction de leur nombre. Dans le cadre de cette recherche, le premier instrument pouvant caractériser ces propriétés est le SMPS (TSI 3034)²¹, montré à la Figure 1-5. Cette instrument permet d'obtenir directement une distribution de la concentration des particules, en fonction de leurs diamètres, à partir d'un certain volume d'air prédéfini, prélevé en continu par l'instrument. Cet instrument a été conçu à la base pour faire des surveillances des aérosols ambiants et peut être utilisé à des fins de surveillance de l'environnement, ou bien pour de la recherche sur les aérosols atmosphériques, les particules nanométriques, l'évaluation d'épisode de smog, la dynamique des aérosols, la combustion, les matériaux, l'étude de nucléation / condensation, la caractérisation des aérosols, poudres et autres et la détection de petits changements dans les systèmes d'aérosols à changement rapide.²¹ De la sorte, cet instrument convient au type de recherche de ce projet, pour la mesure des particules ayant un diamètre entre 10 et 487 nm, dans 54 canaux, en plus de pouvoir déterminer la concentration totale jusqu'à 10^7 particules/cm³.

Le SMPS effectue l'analyse de particules à la suite de trois étapes distinctes, soit premièrement en traitant les particules par une source radioactive de krypton (Kr-85) dans un chargeur afin d'instaurer une distribution de charge positive connue à toutes les particules. Ensuite, les particules sont séparées par leur mobilité électrique dans un Differential Mobility Analyser (DMA) (discuté plus en détail dans la Section 1.2.1.1) pour finir dans un *Condensation Particle Counter* (CPC) (discuté plus en détail dans la Section 1.2.1.2) afin de détecter les particules, d'une taille déterminée par le DMA, par voie optique. Cet instrument permet de déterminer directement la concentration des particules selon leur taille en temps réel, à partir d'un compte de ces particules, ce qui se traduit par une analyse selon la distribution en taille des aérosols. Plus précisément, la distribution en taille est la concentration des particules (soit le compte effectué des particules par l'instrument représenté par dN) divisée par une gamme de diamètres de particule (représenté par D_p), où les concentrations sont souvent normalisées par le logarithme de la gamme. Ainsi, la technique permet d'obtenir une concentration en cm⁻³, selon cette formule mathématique : $dN/d(\log D_p)$.²

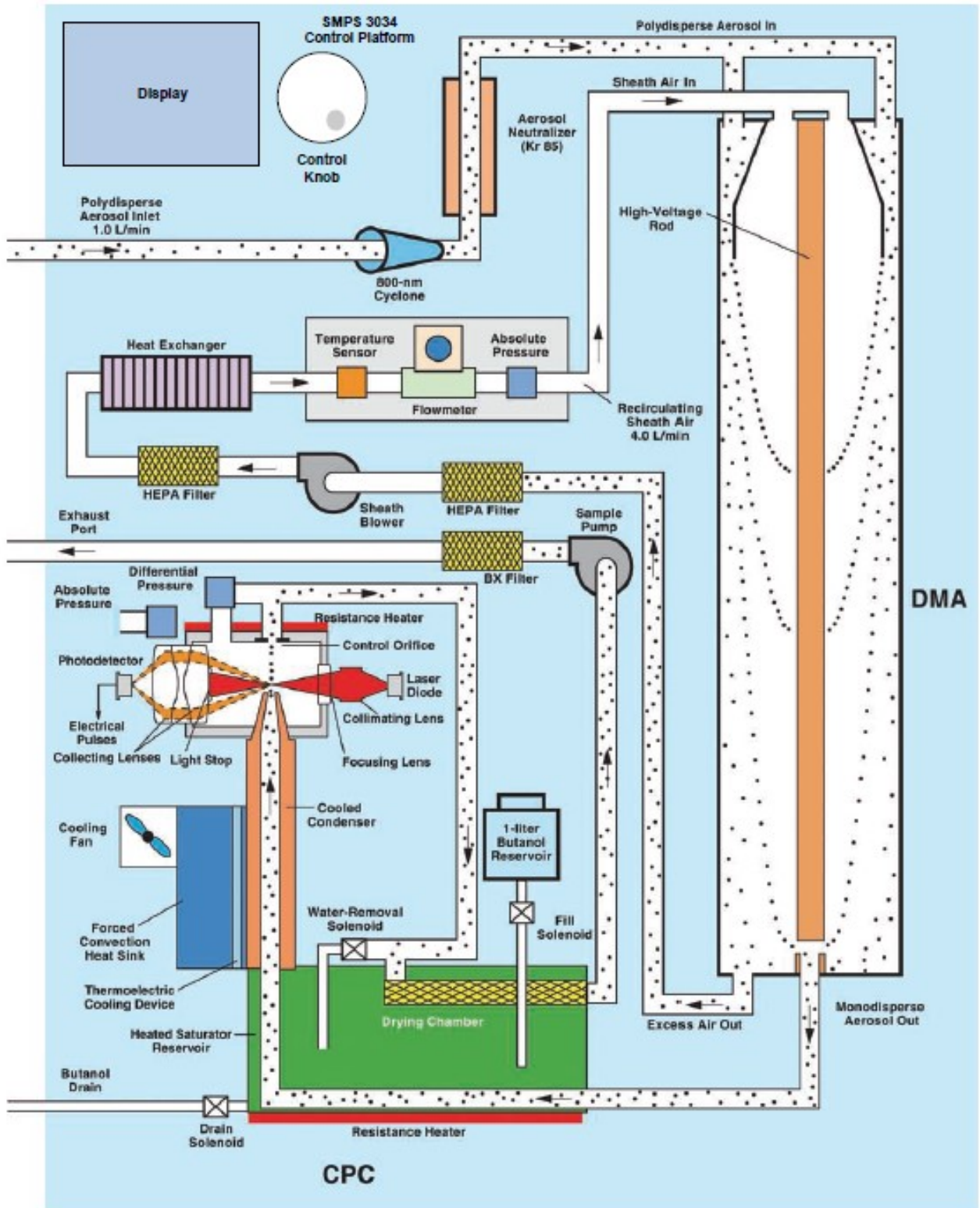


Figure 1-5 Schéma illustrant les composants d'un *Scanning Mobility Particle Sizer* (SMPS).
 Figure provenant du manuel d'opération de la compagnie TSI Incorporated.²¹

1.2.1.1. *Differential Mobility Analyser (DMA)*

La première composante principale du SMPS est le DMA (Figure 1-6), qui permet d'effectuer la séparation des particules selon leur taille. De manière plus précise, les particules sont initialement remises à une charge identique (soit à une charge positive) afin d'obtenir une distribution de charge bien définie. Ensuite, les particules passent directement dans une chambre ayant au centre une tige à haute tension, créant ainsi un champ électrique. Grâce à ce champ électrique, les particules entrent dans la chambre et subissent le champ électrique autour de la tige. Ceci engendre trois possibilités de déplacement des particules, soit (1) les particules sont attirées directement sur la tige; (2) les particules sont dirigées directement dans la sortie du monodisperse, ou bien (3) les particules tombent au fond de la chambre et se dirigent directement vers la sortie d'air.

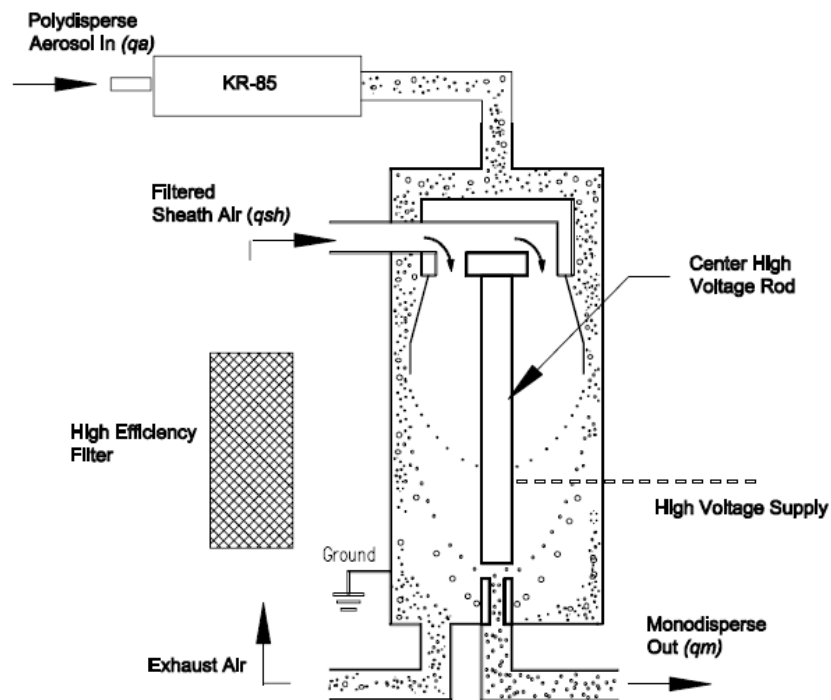


Figure 1-6 Schéma illustrant les composantes d'un DMA.
 Figure provenant du manuel d'opération de la compagnie TSI Incorporated.²²

De manière plus précise, la « chambre » est un cylindre relié à la terre, donc permettant d'effectuer le « *ground* » et ainsi créer le champ électrique avec la tige à haute tension, étant un cylindre à haute tension négative. De la sorte, lorsqu'on change la tension dans le cylindre central, cela change directement la taille des particules qui vont passer dans la sortie

monodisperse. Ainsi, le DMA utilise la relation entre la taille des particules, l'intensité du champ électrique et la trajectoire des particules afin d'envoyer les particules d'une certaine taille dans un instrument raccordé à celui-ci.

1.2.1.2. Condensation Particle Counter (CPC)

La seconde et finale composante du SMPS est le CPC, qui permet de déterminer la concentration des particules analysées. De manière plus précise, selon la Figure 1-7, lorsque des particules, ayant un diamètre à partir de 10 nm, entrent dans l'instrument, celles-ci passent dans un saturateur et un condenseur à froid avant d'être détectées en passant dans le faisceau d'une diode laser focalisée sur la particule.

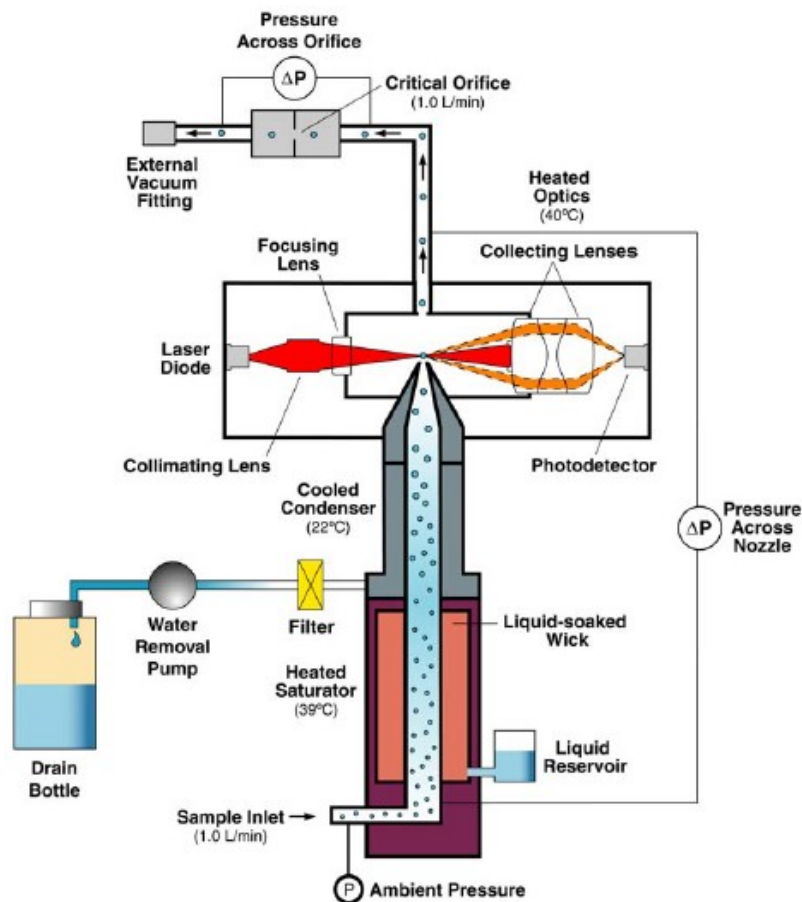


Figure 1-7 Schéma illustrant les composants d'un CPC.
 Figure provenant du manuel d'opération de la compagnie TSI Incorporated.²³

De la sorte, afin de permettre la détection des particules vu leurs petites tailles, il faut tout d'abord augmenter leur diamètre. Pour ce faire, les particules subissent en premier une saturation, soit par vapeur de butanol ou bien par vapeur d'eau, selon le modèle utilisé, afin d'envelopper les particules d'une certaine couche prédéfinie selon la quantité de vapeur envoyée et le trajet que la particule parcourt, d'où celle-ci finit par une chute de température lors de l'étape suivante. Ensuite, afin de fixer le nouveau diamètre des particules obtenues suite à la saturation par vapeur de butanol ou d'eau, les particules passent dans un condensateur à froid qui fait passer les particules d'un environnement chaud (environ 39 °C), à un environnement plus froid (environ 22 °C) sursaturé afin d'arrêter la condensation. Ces deux étapes réunies permettent d'augmenter le diamètre des particules afin d'obtenir une détection plus aisée. Toutefois il est à noter que le diamètre des particules mesuré avec le CPC n'est pas celui qui existe sous des conditions ambiantes sachant qu'il y a une certaine quantité de vapeur adsorbé sur les particules lors de l'étape de condensation.

Finalement, les particules passent au travers d'un faisceau laser permettant le compte des particules grâce aux changements de signal du faisceau laser reflété sur la particule pour ensuite terminer sa diffusion sur la photodiode. Donc par le changement de la diffusion de la lumière détecté sur la photodiode, provenant du laser sur la particule, il est possible d'obtenir le compte des particules analysées. Ainsi, cet instrument permet un comptage rapide en temps réel des particules qui permet, par la combinaison avec le DMA, d'obtenir directement la concentration selon le diamètre des particules mesurées.

1.2.2. *Optical Particle Counter (OPC)*

Afin de caractériser les propriétés physiques des aérosols atmosphériques d'une manière plus étendue, un appareil pouvant mesurer la concentration de particules ayant un diamètre plus large que 487 nm, a été utilisé. Donc, cet instrument permet la prise de mesure en continu de particules plus large que le SMPS, d'où celui-ci est spécialisé pour les plus petites particules. Ainsi, dans le cadre de ce projet, un OPC (Met One GT-526S) a été utilisé afin de mesurer les particules ayant un diamètre de 0.3 à 10 μm . Ensuite, dans le même ordre d'idée qu'un CPC (Section 1.2.1.2), l'OPC permet d'obtenir un compte de particules, selon la taille des aérosols,

par voie optique. Toutefois, comme le démontre la Figure 1-8, les particules sont aspirées et passent directement dans un faisceau laser afin d'envoyer un signal, suite à une diffusion de la lumière produite lors du passage d'une particule, au détecteur.

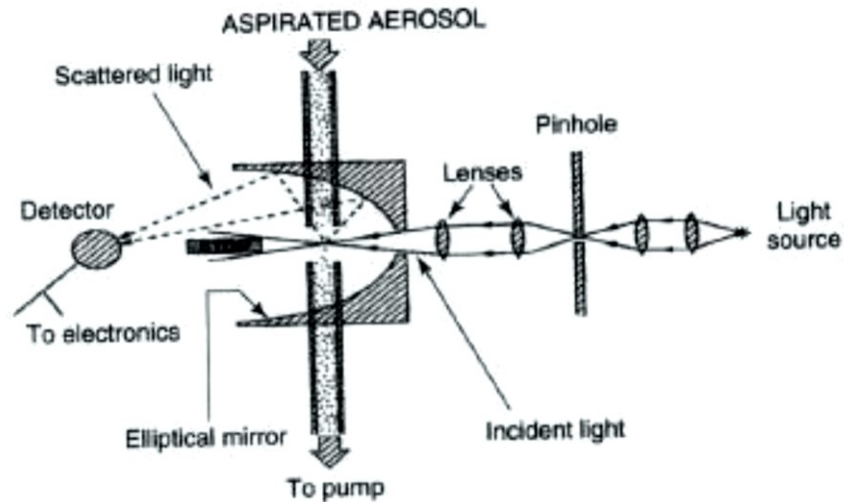


Figure 1-8 Schéma illustrant les composantes d'un OPC.

Figure provenant du manuel d'opération de la compagnie Met One Instruments, Inc.²⁴

De ce fait, contrairement à un CPC, l'OPC mesure directement les particules, sans l'utilisation d'un saturateur suivi d'un condenseur, car les particules analysées par celui-ci ont un diamètre supérieur, donc elles sont plus aisées à analyser. De manière plus précise, l'OPC détecte les particules lorsqu'un signal dépasse le seuil de détection, car en-dessous de ce seuil, le signal correspond au bruit de fond. Ce signal correspond à un signal d'une particule qui sera mesuré et combiné par l'OPC afin d'obtenir la distribution en taille des aérosols. Cependant, le principe reste le même dans la prise des mesures d'un OPC et d'un CPC. En combinant des mesures du SMPS et de l'OPC, on peut obtenir une distribution de tailles plus large des particules analysées.

1.2.3. *Aerosol Mass Spectrometer (AMS)*

Pour caractériser les propriétés chimiques des aérosols atmosphériques, soit leur composition chimique (ex. : s'ils sont composés de chlore, de molécules organiques, etc.), il est

important de choisir un appareil pouvant donner des informations de manière quantitatives en temps réel sur la distribution de la masse et la composition en fonction de la taille des particules. Dans le domaine de la recherche, plusieurs instruments possèdent des critères qui peuvent convenir à la tâche²⁵, toutefois, l'appareil utilisé dans le cadre de cette recherche en Arctique est l'AMS. Cet appareil permet une grande sensibilité pour l'analyse quantitative en temps réel de la distribution de taille de composés semi-volatils présents dans l'atmosphère.²⁶

L'AMS a été développé par la compagnie *Aerodyne Research Inc.*, situé à Boston et est un instrument couplé à un thermodésorbeur avec une source d'ionisation à base d'impact électronique (EI). Celui utilisé dans le cadre de cette recherche, utilise un spectromètre de masse quadripolaire, ce qui permet d'effectuer des mesures de la composition chimique d'aérosols non-réfractaires.²⁷ Cela implique que l'AMS utilisé mesure des composés semi-volatils comme, le nitrate (NO₃), le sulfate (SO₄) et les OA.

Le chemin parcouru par les particules analysées, comme démontré par la Figure 1-9, commence par l'entrée d'air de l'AMS, qui limite le débit d'aérosols entrant grâce à un diamètre limité de 100 µm. Ensuite, les particules vont être convergées en un faisceau étroit par une lentille aérodynamique, composé de plusieurs ouvertures permettant la convergence. Le faisceau de particules est ensuite dirigé vers une chambre sous vide permettant une accélération des particules par inertie, grâce à une différence de pression, car tout le système de l'AMS est placé sous vide. Une fois accélérées, les particules passent au travers d'un hachoir (soit en anglais « *Chopper* »), d'où celui-ci est un disque tournant, composé de deux fentes à 180° l'un de l'autre. Grâce au hachoir, les particules sont séparées selon leur vitesse de déplacement, qui est mesurées par temps de vol lorsqu'elles passent entre le hacheur et le détecteur, où le détecteur est un spectromètre de masse (MS) composé d'un quadripôle. Il est à noter que la vitesse des particules est inversement proportionnelle à leur masse individuelle, ce qui implique qu'une particule ayant une grande taille, et donc une grande masse, se déplacera plus lentement ce qui permet de séparer aisément les particules selon leur taille.

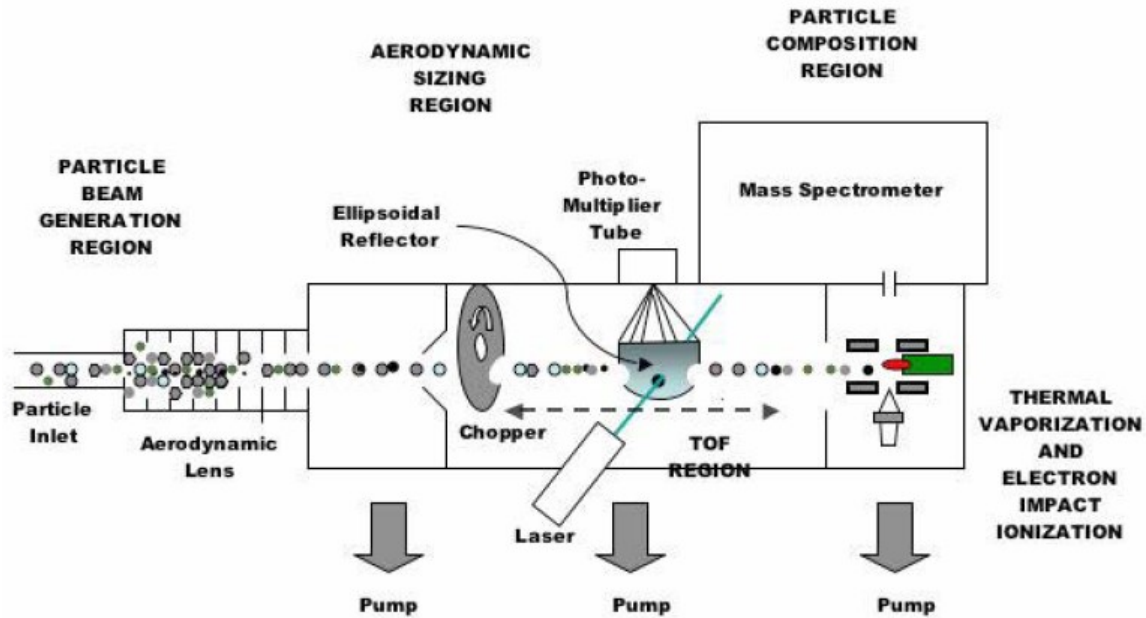


Figure 1-9 Schéma illustrant la composition d'un AMS.

Figure provenant du manuel d'opération de la compagnie Aerodyne Research Inc.²⁸

Une fois les particules séparées par leur taille, celles-ci passent, par ordre croissant de taille, dans un tube en céramique enroulé d'un fil de tungstène²⁹, ce qui induit une chauffe des particules jusqu'à une température de 600 °C. Ce réchauffement cause une évaporation instantanée des composés volatils et semi-volatils (dans l'ordre du μm par seconde), permettant une transformation en ions positifs par EI. Toutefois, des composés non-volatils comme le carbone noir, le chlorure de sodium (NaCl) et certains métaux s'évaporent difficilement, ou tout simplement pas, ce qui rend difficile l'analyse par l'AMS. Cependant, après que les particules ionisées soient sélectionnées dans le quadripôle du MS, celles-ci sont envoyées dans un électromultiplicateur afin de convertir les ions en signal électrique. Ainsi, l'AMS permet de déterminer la composition chimique des particules atmosphériques selon la distribution de leur masse. Ainsi, autant la concentration en vrac que la taille des particules ont été mesurées par l'AMS en succédant entre les modes MS et PToF (temps de vol des particules). Il est à noter qu'il est possible de retirer complètement le hachoir du faisceau de particules afin de mesurer en vrac (sans aucune résolution des particules selon leurs tailles) le diamètre des particules. De plus, il est à noter que l'AMS utilisé dans le cadre de cette recherche permet d'analyser quantitativement des aérosols entre 0.04 et 1.0 μm de diamètre.

1.2.4. Radiosonde

Pour effectuer une étude complète des aérosols atmosphériques, il faut tenir compte de tous les facteurs qui pourraient faire varier la provenance et la composition des aérosols. De la sorte, dans la suite logique de l'analyse des caractéristiques physiques et chimiques et afin de compléter l'analyse de ceux-ci, la météorologie entourant l'emplacement de prise de mesures est requise. Pour ce faire, l'un des premiers paramètres analysés qui ont été effectués lors de cette recherche est l'évaluation du profil de la température verticale afin de percevoir la présence d'inversion de température. Afin d'obtenir ces résultats, une radiosonde (Vaisala RS92-SGP)³⁰ a été utilisée, d'où les données ont été récoltées par la station météorologique d'Eureka (discuté en détail dans la Section 1.3.1) et sont disponibles sur le site de l'*University of Wyoming*, par le département des sciences atmosphériques³¹.

Une radiosonde est normalement constituée d'un thermomètre, d'un baromètre, d'un hygromètre ainsi qu'un capteur GPS, afin de mesurer la température (°C), la pression (hPa), l'humidité relative (%), la vitesse (knot) et la direction du vent (°). Une fois la radiosonde attachée à un ballon météorologique gonflé à l'hélium ou à l'hydrogène, celle-ci peut mesurer jusqu'à une altitude d'environ 35 000 m.

1.2.5. Photoacoustic Extinctionmeters (PAX)

Le PAX est un instrument sensible à la détection d'aérosols, permettant une réponse rapide et à haute résolution, destinée à mesurer les propriétés optiques des aérosols et la détection des particules de carbone noir. L'instrument mesure directement l'absorption de la lumière *in-situ* et la diffusion des particules d'aérosols, dont ses mesures sont dérivées afin d'obtenir l'extinction, le SSA et la concentration en masse de carbone noir (suie).

Afin d'effectuer une prise de mesure simultanée de la diffusion et de l'absorption de la lumière, le PAX utilise un laser à diode modulée. Le fait d'utiliser un laser à diode modulée ayant une certaine longueur d'ondes, soit 405 nm ou 870 nm dans le cadre de cette recherche, permet une analyse plus étendue lors de l'utilisation de plusieurs PAX composés de laser à différentes longueur d'ondes. Par exemple, l'option infrarouge standard, de longueur d'onde

870 nm permet une analyse spécifique des particules carbonées noires, car il y a relativement peu d'absorption des gaz et de différentes espèces d'aérosols (non carbone noir) à cette longueur d'onde. De la sorte, en suivant le schéma de la Figure 1-10, lorsque les particules sont aspirées dans l'orifice d'entrée, placé au centre de la cellule, le flux est divisé entre le néphélomètre (encerclé en bleu à gauche) et le résonateur photoacoustique (encerclé en vert à droite), ce qui permet une mesure simultanée de la diffusion de la lumière et de l'absorption.

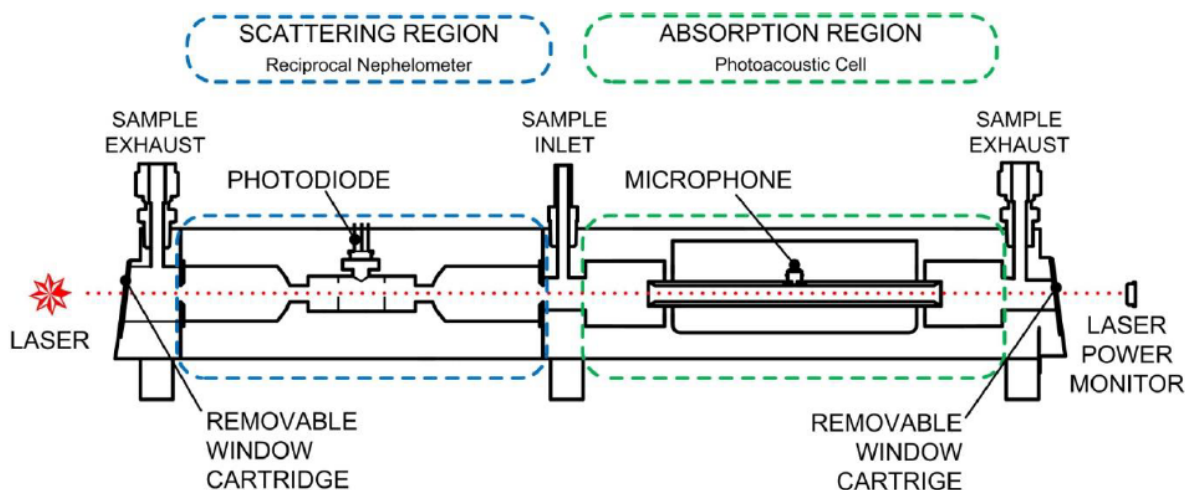


Figure 1-10 Schéma illustrant les composants de la cellule dans un PAX.

Figure provenant du manuel d'opération de la compagnie Droplet Measurement Technologies (DMT), Inc.³²

De manière plus précise, la mesure d'absorption utilise la technologie photoacoustique *in-situ*. Ainsi, lorsqu'un faisceau laser est dirigé au travers du flux de particules, les particules absorbantes se réchauffent et transfèrent rapidement la chaleur dans l'air ambiant, ce qui engendre un réchauffement périodique, causant des ondes de pression qui peuvent être détectées par le microphone sensible à ce type d'onde.

En ce qui a trait à la seconde partie de la cellule, le PAX utilise un néphélomètre réciproque à grand angle d'intégration afin de mesurer le coefficient de diffusion de la lumière. Cette mesure de diffusion répond à tous les types de particules sans tenir compte de la composition chimique, de l'état de mélange ou de la morphologie. Il est à noter que des capteurs et des transducteurs supportent la fonction de la cellule. Mis à part les mesures de diffusion et d'absorption des particules, lorsque le faisceau laser sort de la cellule, la puissance du faisceau est mesurée par une photodiode dans un moniteur de puissance laser afin d'assurer la qualité des mesures lors des vérifications régulières du fonctionnement et de calibration de l'instrument.

De plus, les transducteurs de la cellule permettent la mesure de la pression interne, de l'humidité relative et de la température. Ce retour actif maintient la température de la diode laser à une température constante.

En plus, le PAX calcule directement par lui-même (avec les mesures d'absorption (en $1/Mm$) et de diffusion (en $1/Mm$)) l'extinction, le SSA et la masse de carbone noir. La masse de BC ($\mu g/m^3$) est calculée en divisant l'absorption par la valeur de BC MAC (m^2/g). La valeur de BC MAC correspond à la valeur de la section transversale d'absorption de la masse de carbone noir, qui est différente selon le laser utilisé, par exemple pour un laser à 405 nm, la valeur de BC MAC est $10.19 m^2/g$ et pour un laser à 870 nm, la valeur est égale à $4.75 m^2/g$. Il est à noter que les valeurs de BC MAC correspondent à une valeur calculée et définie par la compagnie ayant conçu les PAX, soit la compagnie *Droplet Measurement Technologies*.³²

1.2.5.1. Analyse du carbone noir en Arctique

Le carbone noir est un aérosol primaire provenant de la combustion incomplète lors de la combustion de la biomasse³³ (ex. incendies), des combustibles fossiles³³ et des processus pétrogéniques³⁴ (ex. minéraux, graphite) et bien d'autres (Figure 1-11). Également, il est à noter que la provenance du carbone noir en Arctique change selon la saison, car en été le carbone noir provient généralement de la combustion de la biomasse (comme les feux de forêt), comparativement en hiver, le carbone noir provient principalement de la combustion domestique et l'exploitation pétrolière et de la gaz naturelle.³⁵ De la sorte, comme présenté dans la Section 1.1.3, le carbone noir fait partie des $PM_{2.5}$ contribuant au forçage radiatif de la Terre et à la fonte des glaciers³⁶, que ce soit en Antarctique ou au Groenland par exemple³³, lorsque le carbone noir précipite sur la glace, celui-ci engendre une diminution de l'albédo des glaciers. De plus, le carbone noir, malgré sa courte durée de vie (entre une journée ou une semaine¹⁹), est considéré comme étant le deuxième contributeur au forçage radiatif, directement après le dioxyde de carbone dans l'atmosphère.³⁷ Le fait de contribuer au forçage radiatif peut conduire à des conséquences considérables, telles que l'obscurcissement global, la baisse des rendements agricoles et peut même avoir un impact négatif sur les écosystèmes terrestres et aquatiques.³⁸

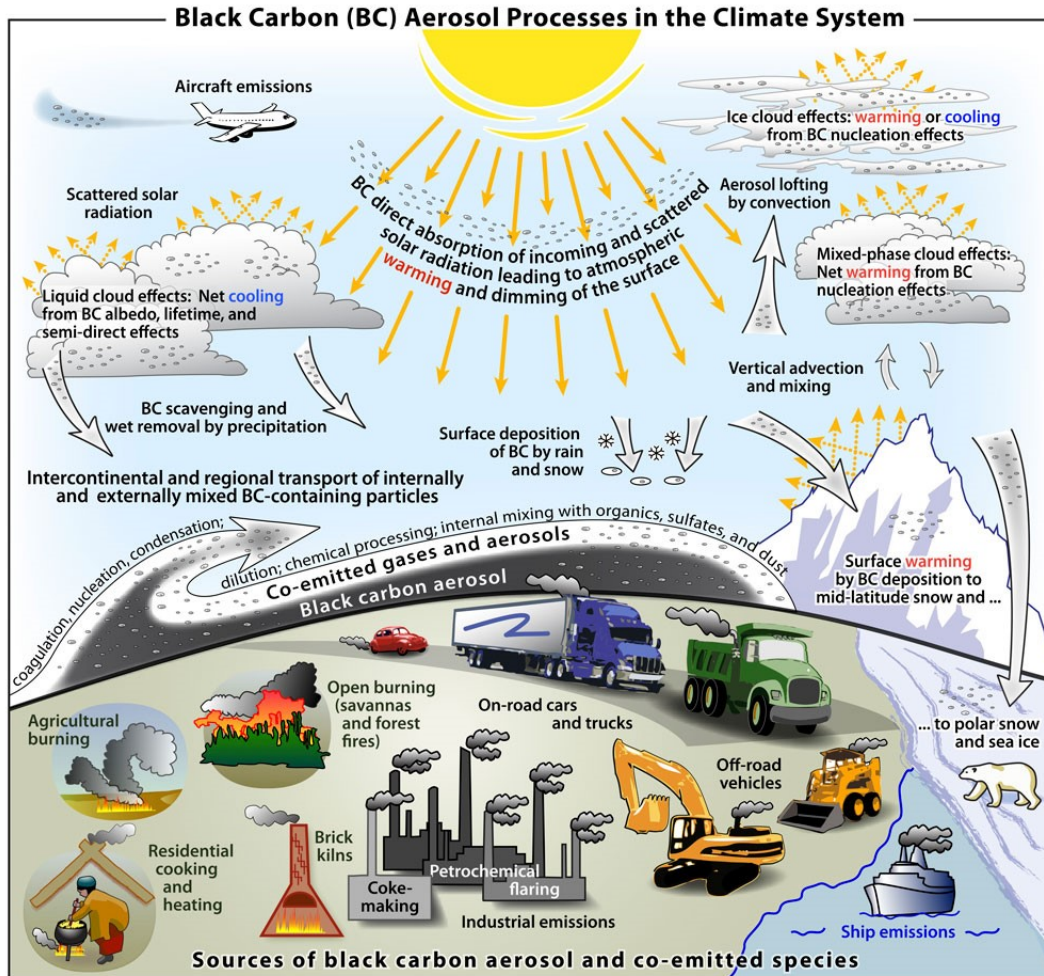


Figure 1-11 Sources d'aérosols de carbone noir et d'espèces co-émises.
 Figure provenant de Bond et al.³⁷

Comme démontré par la recherche de Sand et al.³⁹, le carbone noir mesuré en Arctique peut provenir de plusieurs endroits, comme des États-Unis, du Canada, de l'Europe, mais principalement de la Russie et de l'Asie. Afin d'analyser la concentration de carbone noir en Arctique, l'instrument de prédilection des chercheurs est l'Aethalomètre⁴⁰, un instrument pouvant récolter des particules sur un filtre roulant, qui permet de mesurer l'absorption optique. Cependant, plusieurs problèmes sont répertoriés avec cette méthodologie, dont l'effet d'ombre qui peut arriver lorsque deux particules ou plus tombent au même endroit sur le filtre. De plus, il y a une possibilité d'interférences avec d'autres particules n'absorbant pas la lumière infrarouge, mais ayant la possibilité de diffuser la lumière, ce qui engendre un changement dans l'intensité de la lumière transmise à travers le filtre. De ce fait, pour remédier à ces problèmes, l'utilisation d'un PAX est recommandée.

1.3. Travail de terrain en Arctique

1.3.1. Les sites de recherche à Eureka et à Alert

Le site principal où les mesures d'aérosols de surface ont été récoltées se retrouve à Eureka, au Laboratoire de Recherche Atmosphérique sur l'Environnement Polaire (PEARL, ou en anglais « *Polar Environment Atmospheric Research Laboratory* »), situé sur l'île d'Ellesmere au Nunavut, Canada. PEARL (80.0 N, 86.5 W) est située à 610 m au-dessus du niveau de la mer et à 15 km au Nord-Est de la station météorologique d'Environnement et Changement Climatique Canada (ECCC), qui est située au niveau de la mer. De plus, aux alentours de la station ECCC, se trouvent deux autres stations de recherche, soit OPAL (*Zero Altitude PEARL Auxiliary Laboratory*), située directement à côté de l'ECCC et SAFIRE (*Surface and Atmospheric Flux, Irradiance, Radiation Extension Site*), située à 3 km de l'ECCC. Ainsi, plusieurs chercheurs, provenant de plusieurs Universités et d'Environnement Canada, travaillent sur ces différents sites à Eureka, afin d'avancer les recherches sur les changements climatiques en Arctique. En ce qui a trait au second site de recherche, celui-ci se situe à 480 km Nord-Est de PEARL, soit à ALERT (82.5 N, 62.3W). Ce site de recherche est positionné à 210 m au-dessus du niveau de la mer et est reconnu sous le nom de « *Dr. Neil Trivett Global Atmosphere Watch Observatory* ».

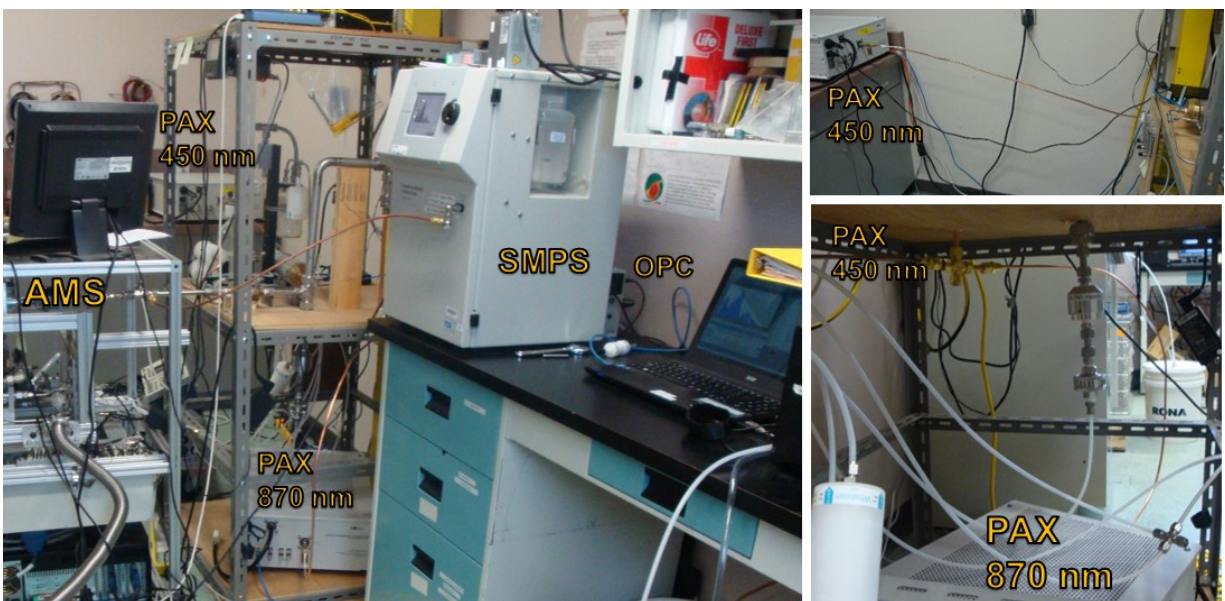


Figure 1-12 Disposition des instruments utilisés à Eureka, à l'intérieur de la station PEARL.

Tous les instruments discutés dans la Section 1.2 sont installés et opérés à Eureka (Figure 1-12). Un second SMPS, installé à Alert, a été utilisé au cours de cette recherche. Ainsi, pour commencer, une radiosonde est lancée deux fois par jour à partir de l'ECCC, soit à 00:00 et 12:00 UTC, par une personne travaillant pour Environnement Canada. Il est important de souligner le fait que tous les instruments opérés à Eureka et Alert suivent le temps universel coordonné (UTC), car l'UTC est adoptée comme base du temps, reconnue par les chercheurs au travers du monde, afin de pouvoir comparer les données obtenues par un instrument avec un autre. En ce qui a trait aux autres instruments, ceux-ci sont tous raccordés tous à un tube principal, d'où celui-ci est un tube d'acier inoxydable d'un pouce de diamètre, mesurant 6 m, dont 2 m se situe au-dessus du toit du laboratoire, comme décrit précédemment par Kuhn et al.⁴¹ Cette entrée commune permet aux instruments d'échantillonnés simultanément les mêmes aérosols à longueur d'année.

1.3.2. Les particularités de l'Arctique

Le changement climatique est le résultat d'une augmentation globale de la température planétaire. Toutefois, comme le présente la Figure 1-13, ce réchauffement est hétérogène, mais celui-ci est d'une ampleur plus importante dans les régions nordiques, incluant l'Arctique. Ainsi, l'Arctique devient un emplacement de choix afin d'observer les changements climatiques, vu que ces changements se produisent plus rapidement dans le Nord, comparativement au reste de la planète, il devient plus aisé de déceler les différents paramètres de l'environnement qui change au fur et à mesure des années.

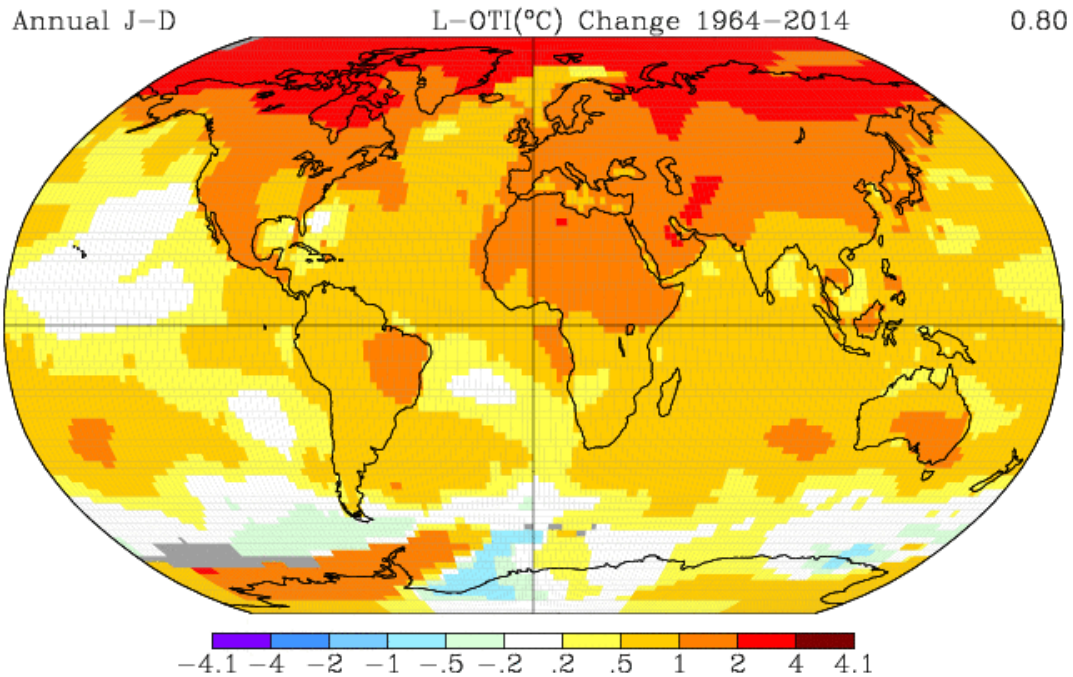


Figure 1-13 Représentation des changements de températures sur la planète entre 1964 et 2014.

Figure provenant de GISTEMP Team.⁴²

De plus, l'Arctique n'étant pas habité dans les régions comme Eureka ou Alert, ceci facilite la tâche au point de vue de l'analyse atmosphérique, ou autre, car s'il n'y a personne pour changer l'environnement local de ces régions, cela permet de déceler les impacts globaux dans tout l'hémisphère nord du globe. En effet, comme il est démontré dans la Figure 1-14 A, tous les vents étant d'un côté ou de l'autre des hémisphères nord ou sud, rendu dans la stratosphère, se rendent jusqu'au pôle. Arrivés proches des pôles, les vents sont ensuite repoussés, en partie, par le courant jet polaire, se trouvant à la barrière du front polaire.

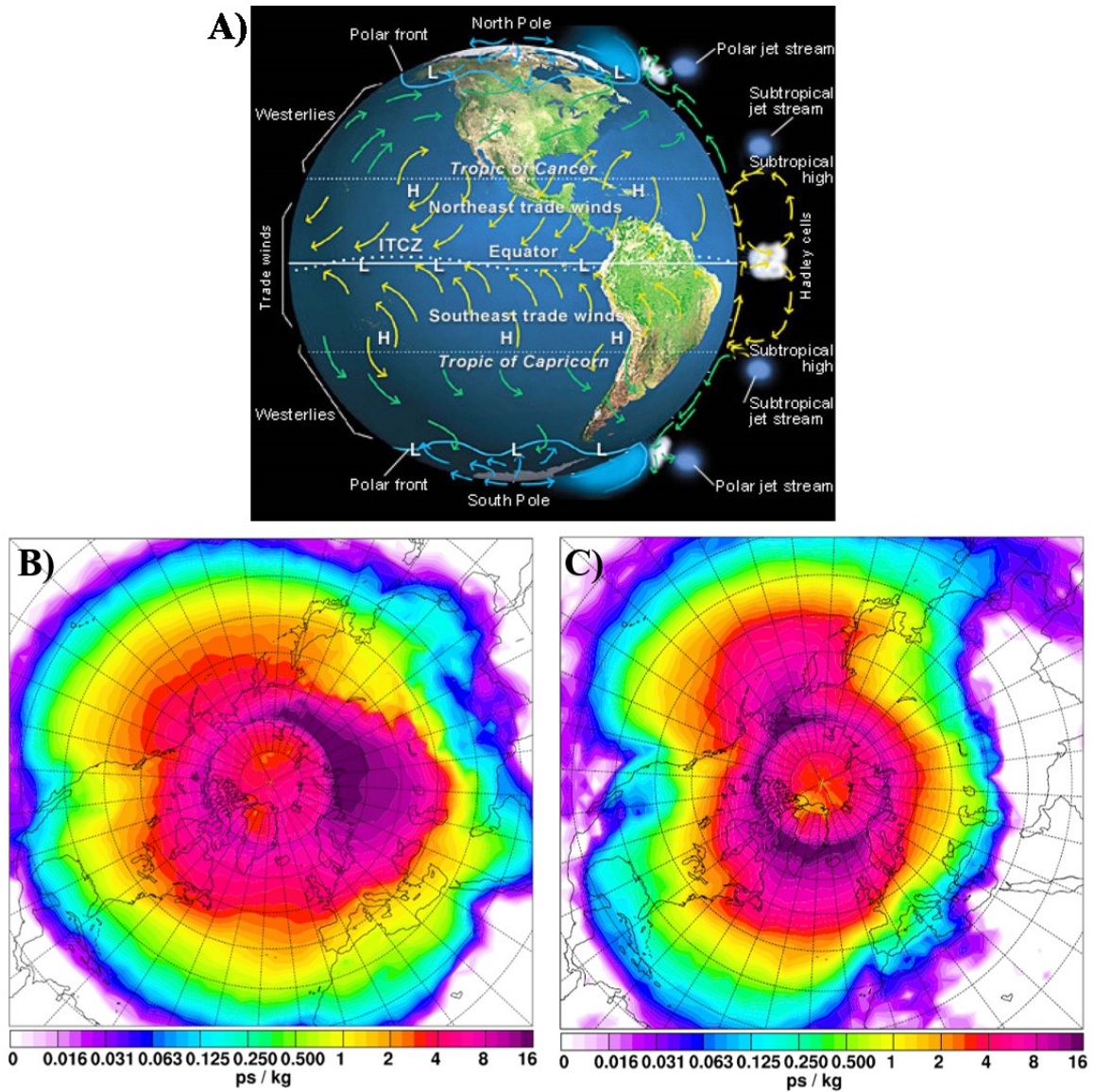


Figure 1-14 Représentation du courant des vents sur la planète (A) et du transport saisonnier des aérosols analysés en Arctique durant l'hiver (B) et l'été (C).

Figure provenant de (A)Happ et al.⁴³ et de (B et C) Stohl.⁴⁴

Toutefois, le front polaire est en constantes évolutions, et il est a été noter que celui-ci a une circonférence plus étendue autour de l'Arctique durant l'hiver, et plus restreinte pendant l'été. De ce fait, tout ce qui est mesuré à Eureka provient soit du front polaire, ou bien directement de l'hémisphère nord. Ceci est confirmé par les recherches faites par Stohl⁴⁴ sur les transports saisonniers dans l'Arctique, démontré dans la Figure 1-14 B et C, où celle-ci représente la provenance des particules se rendant en Arctique durant l'hiver (B) et l'été (C) (quantité de particules ayant atteint l'Arctique, du plus faible (blanc) aux plus grandes (rose

foncé)), à l'aide d'une trajectoire inverse de 30 jours. Ainsi, à l'aide de ces trajectoires inverses, Stohl a pu déterminer des caractéristiques propres à l'Arctique durant l'hiver et l'été. De la sorte, durant l'hiver, l'Arctique n'a aucun rayonnement solaire, les inversions des masses d'air sont stables, les dépôts des particules atmosphériques sont au minimum, les temps de transport des aérosols sont plus courts et les aérosols de cette région sont influencés par le nord de l'Eurasie. Ensuite, durant l'été, l'Arctique est constamment sous les rayons solaires, il se produit de la convection des vents, il y a un haut taux de dépôts humides, le temps de transport des aérosols est plus long et il y a moins d'influences continentales. De plus, selon des recherches faites par Quinn et al.⁴⁵ en Alaska et à Alert, ceux-ci ont pu confirmer un cycle face à la concentration pouvant être mesurée de nitrate (NO₃) et de sulfate (SO₄) (ne provenant pas des sels de mer). Ce cycle démontre une très faible concentration de ces deux composés durant l'été, ce qui induit le fait qu'il est difficile de les mesurer lors de cette période. En plus, ces recherches ont démontré qu'entre 1981 et 2004, la concentration de sulfate a diminué au cours des années.

Par ces différences entre les saisons, mais tout particulièrement pendant l'hiver, un phénomène se produit en Arctique, soit la brume arctique. Ce phénomène se traduit par l'accumulation graduelle des particules atmosphériques à l'intérieur du front polaire. Cette accumulation est due au fait que le dépôt des particules atmosphériques est à son minimum. Par cette accumulation de particules dans la stratosphère, les particules vont coaguler et ainsi, les particules qui vont être observées tout au long de l'hiver vont être du mode « *Accumulation* » et du mode « *Coarse* ». Comparativement à l'été, quand les particules fraîchement formées sont directement détectées lors d'analyse en Arctique, il devient possible de mesurer une plus haute concentration de particules dans les modes « *Nucleation* » et « *Aitken* » (voir Figure 1-1).

Il est aussi à noter que l'Arctique est un environnement de choix afin d'analyser les particules atmosphériques grâce à son climat désertique qui rend l'air très sec et au fait qu'il n'y a aucune ville ou village pouvant altérer les données prises. En effet, en Arctique, précisément à Eureka et Alert, aucune communauté, ville ou village est répertorié à proximité directe de ces endroits, ce qui induit que l'air analysé est propre de toute pollution humaine locale. Ainsi, les particules se retrouvant dans l'atmosphère locale proviennent de sources naturelles ou d'une autre région au-dessus de l'équateur.

1.3.2.1. Formation et composition des particules dans la nucléation des nuages

Suite à de nombreuses recherches effectuées sur la provenance des aérosols formant les CCN⁴⁶ (« *cloud condensation nuclei* »), une hypothèse a été relevée sur le fait qu'elle serait des particules organiques provenant des micro-organismes marins.⁴⁷⁻⁴⁹ En effet, comme le démontre la Figure 1-15, les organismes marins, tels que les phytoplanctons, les microalgues et les cyanobactéries (présents aussi dans les eaux arctiques) produisent du diméthyle sulfoniopropionate (DMSP). Ce composé est ensuite transformé en diméthyle sulfure (DMS) par les enzymes des microalgues, ainsi que des bactéries hétérotrophes. Une fois le DMS formé, celui-ci se retrouve en état gazeux dans l'atmosphère par le vent, les vagues et l'évaporation de l'eau. Ensuite, le DMS est photooxydé par les rayons du soleil, afin de former du DMSO, du DMSO₂, de l'acide méthylsulfonique, de l'acide sulfurique (H₂SO₄) et du dioxyde de soufre (SO₂). Toutefois, une fois ces composés formés, plus précisément le SO₂ et le H₂SO₄, ceux-ci peuvent devenir les précurseurs de particules dans le mode « *Nucleation* » et ainsi, comme il est mentionné dans la Section 1.1.3, former des nuages, d'où ceux-ci sont communément appelés CCN.

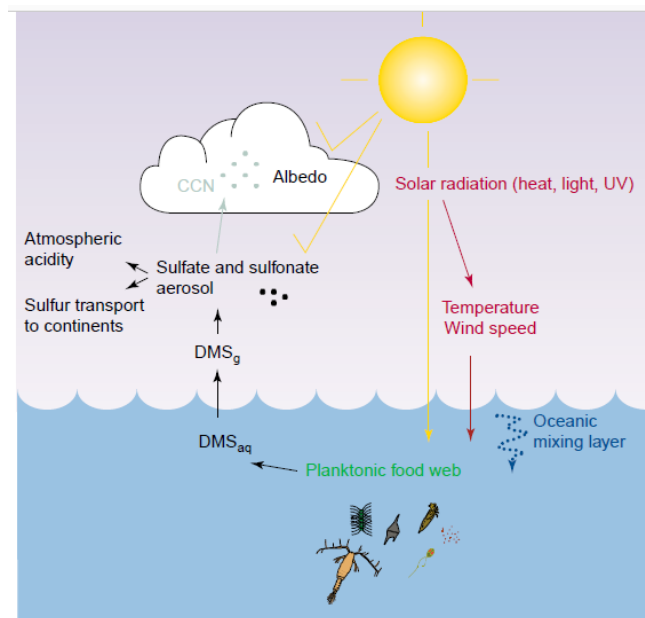


Figure 1-15 Production d'aérosols sulfate par photooxydation du diméthyle sulfure (DMS).
Figure provenant de Simó.⁴⁸

Cependant, il est à noter que la formation des CCN dépend de plusieurs facteurs, ce qui rend la description de leur formation incertaine. La formation des gouttelettes de nuages à partir des CCN peut être expliquée par la théorie de Koehler, d'où celle-ci est un regroupement de l'effet de Kelvin et la loi de Raoult. Premièrement, l'effet Kelvin explique le fait que plus une particule a un diamètre moindre, plus celle-ci s'évaporera rapidement. Toutefois, en prenant compte de la loi de Raoult, lorsque les particules sont en présence d'une autre substance (formant une solution non pure), celle-ci peut réduire leur vitesse d'évaporation, car le nombre de molécules d'eau en interaction directe avec la phase gazeuse diminue. De la sorte, lorsqu'on prend ceci en considération et qu'on l'applique à la formation des CCN, cela donne une courbe comme démontrée dans la Figure 1-16, où S_c correspond à la supersaturation critique, r_c correspond au radius critique et S_k correspond à la sursaturation d'une particule. Cette courbe permet d'obtenir une représentation graphique de la théorie de Koehler. En regardant la courbe noire (courbe de référence de la théorie de Koehler), celle-ci représente le grossissement d'une particule aqueuse, dans l'atmosphère lorsqu'un CCN est formé.

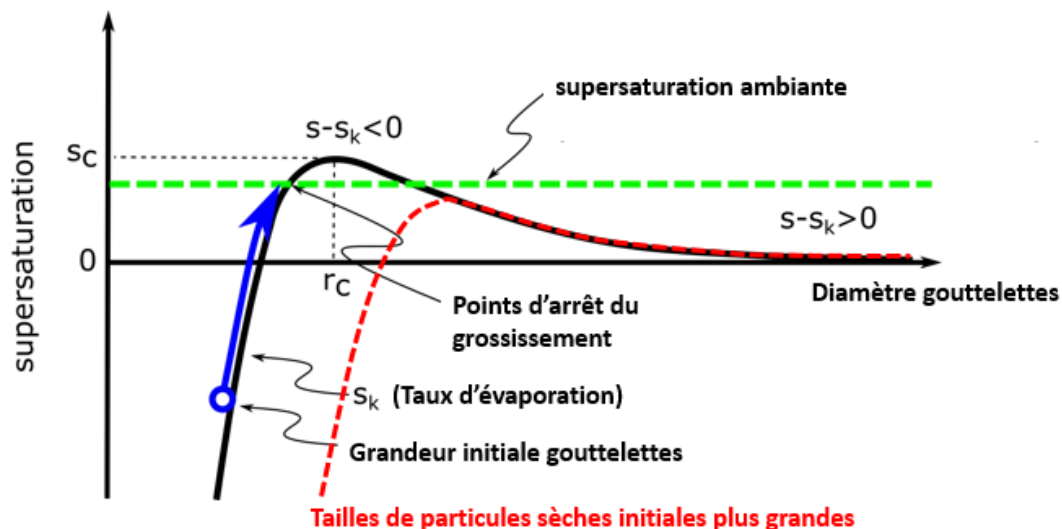


Figure 1-16 Nucléation des nuages selon la taille des particules.

Figure conçue à partir de Seinfeld et al.²

Lorsque la particule atteint la taille et une supersaturation supérieure à la supersaturation ambiante, cela peut engendrer une précipitation du nuage nouvellement formé. De la sorte, selon la Figure 1-16, la courbe noire représente les plus petites particules qui grossissent selon la courbe. Par la suite, ces particules vont atteindre une certaine taille en absorbant l'eau, d'où cette taille est définie par l'intersection de la courbe noire et de la ligne verte pointillée (soit la

supersaturation ambiante). Dans ce cas, la croissance des particules, selon l'absorption d'eau limitée, va induire la formation de brume. Ensuite, le cas de figure représenté par la courbe rouge pointillée, démontre le même phénomène, mais pour une particule qui a un grand diamètre sec initial. Cependant, cette particule n'interceptera jamais la supersaturation ambiante, ce qui signifie que la particule continuera à croître sans atteindre l'équilibre avec l'atmosphère ambiante. Dans ce cas, la particule se développe dans une gouttelette de nuage et finit par précipiter.

De la sorte, par ce phénomène, l'atmosphère arctique est très sensible aux concentrations d'aérosols atmosphériques. En effet, comme démontré par Carslaw et al.⁵⁰, plus les émissions anthropiques sont élevées, plus l'albédo d'un nuage est changé par des particules atmosphériques. Ceci est dû à la très grande sensibilité de l'albédo lorsque les conditions initiales sont très propres. Ainsi, il devient important d'analyser ces particules atmosphériques afin de déterminer leur nature et leur effet dans l'environnement, dont leur effet sur les nuages.

1.4. L'objectif du projet de recherche

L'objectif de ce projet de recherche consiste à caractériser les différentes propriétés chimiques, physiques et optiques des matières particulaires atmosphériques dans le Grand Nord canadien. Toutefois, comme démontré dans les sections précédentes, le fait que les aérosols ont plusieurs propriétés telles que leur taille, leur forme, leur phase ou bien leur composition chimique, rend la tâche difficile pour les caractériser. Cependant, il est possible de mesurer la concentration totale d'aérosol, la distribution en dimension, puis leur composition en utilisant des instruments sur le terrain. Il est important d'utiliser des instruments à haute résolution temporelle afin d'effectuer une analyse continue et précise des changements des matières particulaires atmosphériques. Dans le cadre de ce projet, il sera question d'effectuer l'analyse des aérosols atmosphériques par l'entremise d'instruments installés sur le terrain, afin de pouvoir effectuer une corrélation entre la composition d'aérosols atmosphériques et leurs propriétés physiques tel quelle leur taille.

De façon plus précise, l'analyse des aérosols atmosphériques sera basée sur les données obtenues par cinq instruments installés en Arctique, à Eureka au Nunavut. Ainsi tous les

instruments présentés dans la Section 1.2 ont été utilisés pour caractériser différents aspects de ces matières particulaires atmosphériques. De la sorte, les résultats obtenus par les PAX, un muni d'un laser à 405 nm et l'autre avec un laser à 870 nm, permet d'obtenir des résultats sur l'extinction, le SSA, puis sur la concentration en carbone noir. Ensuite, les résultats provenant d'un SMPS et d'un OPC permet d'obtenir des résultats sur la distribution de la concentration des particules selon leur diamètre (entre 10 et 10 000 nm). Les résultats provenant d'un AMS permet d'obtenir la composition chimique des particules semi-volatiles (entre 0.04 et 1.0 μm) selon leur diamètre. De plus, au travers de cette recherche, il est possible d'évaluer la trajectoire inverse des vents ayant causé la venue de ces particules analysées à Eureka et ainsi obtenir un portrait global, puis un meilleur suivi des déplacements de ces particules ayant un grand impact sur le climat en Arctique.

1.5. Références (Chapitre 1)

1. Jacob, D., *Introduction to Atmospheric Chemistry*. Princeton University Press: 1999.
2. Seinfeld, J. H.; Pandis, S. N., *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*. Wiley: 2012.
3. Hallquist, M.; Wenger, J. C.; Baltensperger, U.; Rudich, Y.; Simpson, D.; Claeys, M.; Dommen, J.; Donahue, N. M.; George, C.; Goldstein, A. H.; Hamilton, J. F.; Herrmann, H.; Hoffmann, T.; Iinuma, Y.; Jang, M.; Jenkin, M. E.; Jimenez, J. L.; Kiendler-Scharr, A.; Maenhaut, W.; McFiggans, G.; Mentel, T. F.; Monod, A.; Prevot, A. S. H.; Seinfeld, J. H.; Surratt, J. D.; Szmigielski, R.; Wildt, J., The formation, properties and impact of secondary organic aerosol: current and emerging issues. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2009**, *9* (14), 5155-5236.
4. Buseck, P. R.; Adachi, K., Nanoparticles in the Atmosphere. *Elements* **2008**, *4* (6), 389-394.
5. Finlayson-Pitts, B. J.; Pitts, J. N., *Chemistry of the Upper and Lower Atmosphere: Theory, Experiments, and Applications*. Elsevier Science: 1999.
6. Dockery, D. W.; Pope, C. A., Acute respiratory effects of particulate air-pollution. *Annual Review of Public Health* **1994**, *15*, 107-132.
7. Service; de; l'environnement, Bilan environnemental 2014: Qualité de l'air à Montréal. Réseau de surveillance à la qualité de l'air (RSQA), 2015. http://ville.montreal.qc.ca/pls/portal/docs/PAGE/ENVIRO_FR/MEDIA/DOCUMENTS/RSQA_BILAN2014_FR.PDF.
8. Lelieveld, J.; Evans, J. S.; Fnais, M.; Giannadaki, D.; Pozzer, A., The contribution of outdoor air pollution sources to premature mortality on a global scale. *Nature* **2015**, *525* (7569), 367-384.
9. Han, L. J.; Zhou, W. Q.; Li, W. F.; Li, L., Impact of urbanization level on urban air quality: A case of fine particles (PM_{2.5}) in Chinese cities. *Environmental Pollution* **2014**, *194*, 163-170.
10. Han, X. L.; Naeher, L. P., A review of traffic-related air pollution exposure assessment studies in the developing world. *Environment International* **2006**, *32* (1), 106-120.
11. Gupta, P.; Christopher, S. A.; Wang, J.; Gehrig, R.; Lee, Y.; Kumar, N., Satellite remote sensing of particulate matter and air quality assessment over global cities. *Atmospheric Environment* **2006**, *40* (30), 5880-5892.

12. He, K. B.; Yang, F. M.; Ma, Y. L.; Zhang, Q.; Yao, X. H.; Chan, C. K.; Cadle, S.; Chan, T.; Mulawa, P., The characteristics of PM_{2.5} in Beijing, China. *Atmospheric Environment* **2001**, *35* (29), 4959-4970.
13. Reeves, F., *Planète Coeur*. CHU Sainte-Justine MULTIMONDES ed.: 2011.
14. Pope, C. A.; Burnett, R. T.; Thun, M. J.; Calle, E. E.; Krewski, D.; Ito, K.; Thurston, G. D., Lung cancer, cardiopulmonary mortality, and long-term exposure to fine particulate air pollution. *Jama-Journal of the American Medical Association* **2002**, *287* (9), 1132-1141.
15. Pope, C. A.; Dockery, D. W., Health effects of fine particulate air pollution: Lines that connect. *Journal of the Air & Waste Management Association* **2006**, *56* (6), 709-742.
16. Pope, C. A.; Ezzati, M.; Dockery, D. W., Air Pollution and Life Expectancy Reply. *New England Journal of Medicine* **2009**, *360* (19), 2033-2034.
17. EPA Particulate Matters (PM) Basics. <https://www.epa.gov/pm-pollution/particulate-matter-pm-basics#PM> (accessed 12 august 2016).
18. Landy, J. C.; Ehn, J. K.; Barber, D. G., Albedo feedback enhanced by smoother Arctic sea ice. *Geophysical Research Letters* **2015**, *42* (24), 10714-10720.
19. Change, I. P. o. C.; Stocker, T., *Climate Change 2013: The Physical Science Basis: Working Group I Contribution to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press: 2014.
20. Ramanathan, V.; Crutzen, P. J.; Kiehl, J. T.; Rosenfeld, D., Atmosphere - Aerosols, climate, and the hydrological cycle. *Science* **2001**, *294* (5549), 2119-2124.
21. TSI; Incorporated, *Model 3034 SMPS™ Scanning Mobility Particle Sizer™, Spectrometer Instruction Manual, P/N 1980482*. 2013.
22. TSI; Incorporated, *Product Information: Model 3080-Series, Electrostatic Classifiers*. 2001.
23. TSI; Incorporated, *Model 3772/3771 Condensation Particle Counter, Operation and Service Manual, P/N 1980529*. **2007**.
24. Met; One; Instruments; Inc., *GT-526S, Manual*. 2012.
25. Jimenez, J. L.; Jayne, J. T.; Shi, Q.; Kolb, C. E.; Worsnop, D. R.; Yourshaw, I.; Seinfeld, J. H.; Flagan, R. C.; Zhang, X. F.; Smith, K. A.; Morris, J. W.; Davidovits, P., Ambient aerosol

sampling using the Aerodyne Aerosol Mass Spectrometer. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* **2003**, *108* (D7).

26. Canagaratna, M. R.; Jimenez, J. L.; Kroll, J. H.; Chen, Q.; Kessler, S. H.; Massoli, P.; Hildebrandt Ruiz, L.; Fortner, E.; Williams, L. R.; Wilson, K. R.; Surratt, J. D.; Donahue, N. M.; Jayne, J. T.; Worsnop, D. R., Elemental ratio measurements of organic compounds using aerosol mass spectrometry: characterization, improved calibration, and implications. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2015**, *15* (1), 253-272.

27. Canagaratna, M. R.; Jayne, J. T.; Jimenez, J. L.; Allan, J. D.; Alfarra, M. R.; Zhang, Q.; Onasch, T. B.; Drewnick, F.; Coe, H.; Middlebrook, A.; Delia, A.; Williams, L. R.; Trimborn, A. M.; Northway, M. J.; DeCarlo, P. F.; Kolb, C. E.; Davidovits, P.; Worsnop, D. R., Chemical and microphysical characterization of ambient aerosols with the aerodyne aerosol mass spectrometer. *Mass Spectrometry Reviews* **2007**, *26* (2), 185-222.

28. Aerodyne; Research; Inc., ARI Aerosol Mass Spectrometer: Operation Manual. Billerica, Massachusetts. www.aerodyneresearch.com.

29. Jayne, J. T.; Leard, D. C.; Zhang, X. F.; Davidovits, P.; Smith, K. A.; Kolb, C. E.; Worsnop, D. R., Development of an aerosol mass spectrometer for size and composition analysis of submicron particles. *Aerosol Science and Technology* **2000**, *33* (1-2), 49-70.

30. Ràdiosonda VAISALA RS92. <http://www.spinnet.sk/index.php?page=meteo/sensors/rs92> (accessed 30 august 2017).

31. University of Wyoming, college of Engineering, Department of Atmospheric Science. <http://weather.uwyo.edu/upperair/sounding.html> (accessed 30 august 2017).

32. Droplet; Measurement; Technologies; Inc., *Photoacoustic Extinctionmeter (PAX), Operator Manual*. 2014.

33. McConnell, J. R.; Edwards, R.; Kok, G. L.; Flanner, M. G.; Zender, C. S.; Saltzman, E. S.; Banta, J. R.; Pasteris, D. R.; Carter, M. M.; Kahl, J. D. W., 20th-century industrial black carbon emissions altered arctic climate forcing. *Science* **2007**, *317* (5843), 1381-1384.

34. Bisiaux, M. M.; Edwards, R.; Heyvaert, A. C.; Thomas, J. M.; Fitzgerald, B.; Susfalk, R. B.; Schladow, S. G.; Thaw, M., Stormwater and Fire as Sources of Black Carbon Nanoparticles to Lake Tahoe. *Environmental Science & Technology* **2011**, *45* (6), 2065-2071.

35. Stohl, A.; Berg, T.; Burkhardt, J. F.; Fjaeraa, A. M.; Forster, C.; Herber, A.; Hov, O.; Lunder, C.; McMillan, W. W.; Oltmans, S.; Shiobara, M.; Simpson, D.; Solberg, S.; Stebel, K.; Strom, J.; Torseth, K.; Treffeisen, R.; Virkkunen, K.; Yttri, K. E., Arctic smoke - record high air

pollution levels in the European Arctic due to agricultural fires in Eastern Europe in spring 2006. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2007**, 7, 511-534.

36. NASA; Jenner, L.; Dunbar, B. Black and White: Soot on Ice. http://www.nasa.gov/vision/earth/environment/arctic_soot.html (accessed 12 march 2016).

37. Bond, T. C.; Doherty, S. J.; Fahey, D. W.; Forster, P. M.; Berntsen, T.; DeAngelo, B. J.; Flanner, M. G.; Ghan, S.; Kaercher, B.; Koch, D.; Kinne, S.; Kondo, Y.; Quinn, P. K.; Sarofim, M. C.; Schultz, M. G.; Schulz, M.; Venkataraman, C.; Zhang, H.; Zhang, S.; Bellouin, N.; Guttikunda, S. K.; Hopke, P. K.; Jacobson, M. Z.; Kaiser, J. W.; Klimont, Z.; Lohmann, U.; Schwarz, J. P.; Shindell, D.; Storelvmo, T.; Warren, S. G.; Zender, C. S., Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* **2013**, 118 (11), 5380-5552.

38. Wang, Q. Y.; Huang, R. J.; Cao, J. J.; Tie, X. X.; Ni, H. Y.; Zhou, Y. Q.; Han, Y. M.; Hu, T. F.; Zhu, C. S.; Feng, T.; Li, N.; Li, J. D., Black carbon aerosol in winter northeastern Qinghai-Tibetan Plateau, China: the source, mixing state and optical property. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2015**, 15 (22), 13059-13069.

39. Sand, M.; Berntsen, T. K.; von Salzen, K.; Flanner, M. G.; Langner, J.; Victor, D. G., Response of Arctic temperature to changes in emissions of short-lived climate forcers. *Nature Climate Change* **2016**, 6 (3), 286-290.

40. Drinovec, L.; Gregoric, A.; Zotter, P.; Wolf, R.; Bruns, E. A.; Prevot, A. S. H.; Petit, J. E.; Favez, O.; Sciare, J.; Arnold, I. J.; Chakrabarty, R. K.; Moosmuller, H.; Filep, A.; Mocnik, G., The filter-loading effect by ambient aerosols in filter absorption photometers depends on the coating of the sampled particles. *Atmospheric Measurement Techniques* **2017**, 10 (3), 1043-1059.

41. Kuhn, T.; Damoah, R.; Bacak, A.; Sloan, J. J., Characterising aerosol transport into the Canadian High Arctic using aerosol mass spectrometry and Lagrangian modelling. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2010**, 10 (21), 10489-10502.

42. GISTEMP; Team. GISS Surface Temperature Analysis (GISTEMP) 2014. <https://data.giss.nasa.gov/gistemp/>.

43. Happ, E.; Wolk, C. Climate Change, Earth's changing atmosphere. <https://climatechange1.wordpress.com/2011/01/17/earths-changing-atmosphere/> (accessed 17 january 2011).

44. Stohl, A., Characteristics of atmospheric transport into the Arctic troposphere. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* **2006**, 111 (D11), 17.

45. Quinn, P. K.; Shaw, G.; Andrews, E.; Dutton, E. G.; Ruoho-Airola, T.; Gong, S. L., Arctic haze: current trends and knowledge gaps. *Tellus Series B-Chemical and Physical Meteorology* **2007**, *59* (1), 99-114.
46. Burkart, J.; Hodshire, A. L.; Mungall, E. L.; Pierce, J. R.; Collins, D. B.; Ladino, L. A.; Lee, A. K. Y.; Irish, V.; Wentzell, J. J. B.; Liggio, J.; Papakyriakou, T.; Murphy, J.; Abbatt, J., Organic Condensation and Particle Growth to CCN Sizes in the Summertime Marine Arctic Is Driven by Materials More Semivolatile Than at Continental Sites. *Geophysical Research Letters* **2017**, *10*, 725-734.
47. Levasseur, M., Impact of Arctic meltdown on the microbial cycling of sulphur. *Nature Geoscience* **2013**, *6* (9), 691-700.
48. Simo, R., Production of atmospheric sulfur by oceanic plankton: biogeochemical, ecological and evolutionary links. *Trends in Ecology & Evolution* **2001**, *16* (6), 287-294.
49. Charlson, R. J.; Lovelock, J. E.; Andreae, M. O.; Warren, S. G., Oceanic phytoplankton, atmospheric sulfur, cloud albedo and climate. *Nature* **1987**, *326* (6114), 655-661.
50. Carslaw, K. S.; Lee, L. A.; Reddington, C. L.; Pringle, K. J.; Rap, A.; Forster, P. M.; Mann, G. W.; Spracklen, D. V.; Woodhouse, M. T.; Regayre, L. A.; Pierce, J. R., Large contribution of natural aerosols to uncertainty in indirect forcing. *Nature* **2013**, *503* (7474), 67-79.

**Chapitre 2 - Characterization
of aerosol growth events on
Ellesmere Island during the
summers of 2015 and 2016**

2.1. Préface

Le présent chapitre comprend l'article soumis pour publication le 31 décembre 2017, dans le journal *Atmospheric Chemistry and Physics*. Cet article relève de l'analyse d'évènements de grossissement de particules atmosphériques dans le Grand Nord canadien, en utilisant un SMPS, un AMS et un OPC.

En tant que premier auteur, pour ces travaux en Arctique, j'ai effectué la maintenance des instruments à 3 reprises à Eureka, en plus d'avoir analysé presque toutes les données expérimentales obtenues. Pour la rédaction de cet article, j'ai écrit la base de l'article, seulement quelques sections ont été complétées par les coauteurs afin de décrire davantage les techniques utilisées pour l'analyse. En ce qui a trait aux autres auteurs, premièrement, Jean-Christophe Picard a analysé des données atmosphériques obtenues par radiosondes relâchées à Eureka, en plus de créer une programmation informatique afin de calculer le taux de croissance des particules au début des évènements analysés. Par la suite, Erik Lutsch et Kimberly Strong ont effectué les calculs des trajectoires inverses des particules à l'aide du programme FLEXPART. En ce qui a trait à Pierre Fogel, celui-ci est le gestionnaire du site à Eureka qui veille aux besoins des chercheurs aux différentes stations. Afin d'obtenir les données du SMPS provenant de la station située à Alert, nous avons collaboré avec W. Richard Leitch, Sangeeta Sharma et Felicia Kolonjari d'Environnement et Changements Climatiques Canada. Finalement, Rachel Y.-W. Chang a aidé à l'installation et à l'analyse des données provenant de l'AMS à Eureka. Le projet fut conçu et l'article rédigé sous la direction de Prof. Patrick Hayes. De la sorte, l'article a été formaté afin de conserver une cohérence entre l'article et l'ensemble du mémoire.

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

2.2. Article

Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

Samantha Tremblay,¹ Jean-Christophe Picard,¹ Jill O. Bachelder¹, Erik Lutsch,² Kimberly Strong,² Pierre Fogal,² W. Richard Leitch,³ Sangeeta Sharma,³ Felicia Kolonjari,³ Christopher J. Cox,⁴ Rachel Y.-W. Chang,⁵ Patrick L. Hayes¹

- (1) Department of Chemistry, Université de Montréal, Montréal, Québec, Canada
- (2) Department of Physics, University of Toronto, Toronto, Ontario, Canada
- (3) Climate Research Division, Environment and Climate Change Canada, Toronto, Ontario, Canada
- (4) Cooperative Institute for Research in Environmental Sciences (CIRES), Boulder, CO, USA and NOAA Physical Sciences Division, Boulder, CO, USA
- (5) Department of Physics and Atmospheric Science, Dalhousie University, Halifax, Nova Scotia, Canada

2.2.1. Abstract

The occurrence of frequent aerosol nucleation and growth events in the Arctic during summertime may impact the region's climate through increasing the number of cloud condensation nuclei in the Arctic atmosphere. Measurements of aerosol size distributions and aerosol composition were taken during the summers of 2015 and 2016 at Eureka and Alert on Ellesmere Island in Nunavut, Canada. The corresponding results provide a better understanding of the frequency and spatial extent of these nucleation and growth events as well as of the composition and sources of aerosol mass during particle growth. These events are observed beginning in June with the melting of the sea ice rather than with polar sunrise, which strongly suggest emissions from marine sources are the primary cause of the events. Frequent particle

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

nucleation followed by growth occurs throughout the summer. Correlated particle growths events at the two sites, separated by over 500 km, indicate large scale conditions play a key role in determining the timing and the characteristics of the events.

In addition, aerosol mass spectrometry measurements are used to analyze the size-resolved chemical composition of aerosols during two selected growth events. It is found that particles with diameters smaller than 100 nm are predominately organic with only a small sulphate contribution. The oxidation of the organic fraction also changes with particle size with larger particles containing a greater fraction of organic acids relative to other non-acid oxygenates (e.g. alcohols or aldehydes). It is also observed that the relative amount of m/z 44 in the measured mass spectra increases during the growth events suggesting increases in organic acid concentrations in the particle phase.

The nucleation and growth events at Eureka are observed most often when the temperature inversion between the sea and the measurement site (at 610 m ASL) is non-existent or weak allowing presumably fresh marine emissions to be mixed upward to the observatory altitude. While the nature of the gaseous precursors responsible for the growth events are poorly understood, oxidation of dimethyl sulphide alone to produce particle phase sulphate or methanesulphonic acid is not consistent with the measured aerosol composition, suggesting the importance of condensation of other gas phase organic compounds for particle growth.

2.2.2. Introduction

Surface aerosol concentrations in the Arctic are characterized by a distinct seasonal cycle, with high mass loadings in the winter followed by very low mass loadings in the summer.¹⁻⁷ This cycle is caused by different transport patterns and by changes in wet deposition, with wintertime air influenced by pollution originating from continental regions at lower latitudes such as Europe, Siberia and even South Asia.⁸ In contrast, during summer time, air masses originating from lower latitudes experience greater wet deposition during transport northwards, resulting in very few particles arriving to the north. Consequently, local sources dominate the surface aerosol. In wintertime Arctic air near the surface spends about one week continuously above 80°N, whereas in summertime the air near the surface spends about two

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

weeks continuously above 80°N ⁸, which increases the relative importance of aerosols originating in the Arctic. The nature and sources of aerosols of Arctic origin during summertime are still poorly understood, although marine and snow or ice-related sources have been suggested in the past (e.g.^{9, 10}). As the Arctic continues to warm and summer sea-ice coverage decreases, contributions from marine sources will likely increase while snow or ice-related sources will decrease. In addition, increased shipping and industrial activities during the Arctic summer in the future could completely shift the relative importance of natural and anthropogenic aerosol sources.

In previous work, aerosol size distribution measurements at Alert and Ny- Ålesund in the Arctic show an annual cycle during which summertime surface aerosols exhibit much smaller particle diameter than wintertime aerosols.⁶⁻⁷ It has been suggested that new particle formation could be the source of these small particles, with dimethyl sulphide (DMS) emitted from the ocean being the key gaseous precursor to less volatile species, such as sulphuric acid and methanesulphonic acid, that contributes to aerosol mass.¹¹⁻¹² Ammonia from sea-bird colonies has also been shown to contribute to new particle formation.¹³ In tropical marine locations, new particle formation tends to occur in the upper part of the troposphere, usually at the outflow of clouds, and these particles are entrained to the surface through mixing, which contributes to relatively stable aerosol size distributions.¹⁴⁻¹⁵ However, modelling studies of the Arctic summer show that persistent cloud and drizzle causes wet deposition and results in low condensation sinks at the surface. These conditions can favour particle nucleation followed by growth between drizzle events.^{7, 16}

Sulphuric acid has long been known to contribute to new particle formation and growth events.^{13, 17-22} However, organic compounds, especially those with lower volatilities, are also known to contribute secondary aerosol mass to particle growth and nucleate new particles in forested and anthropogenic regions²³⁻²⁶ and in the laboratory.²⁷⁻²⁸ Box models have inferred the contribution of non-sulphur species (i.e. organic compounds) to aerosol growth in Greenland²⁹ and in tropical marine cloud outflow³⁰ regions. Burkart et al.³¹ provided indirect evidence that organic compounds contribute to aerosol growth in high-latitude marine environments using both microphysical modeling of a particle growth event as well as cloud condensation nuclei (CCN) hygroscopicity measurements. Recent work by Mungall et al.³² also suggests a marine

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

source of oxygenated volatile organic compounds in the Canadian Arctic, which is photo-mediated and a possible source of precursor vapors for new particle formation or growth.

The GEOS-Chem chemical transport model has been used to model particle formation and size distributions in the Arctic.^{7, 13, 33-35} Recent work using GEOS-Chem with the size-resolved aerosol microphysics package TOMAS^{7, 13} analyzed size distributions of aerosols measured in the Arctic, and showed that GEOS-Chem-TOMAS underestimates Aitken mode particle sizes during the summertime. It was also shown that new particle formation can be driven by neutralization reactions, where missing ammonia emissions can be accounted for by seabird colonies. However, this work acknowledges poor constraints on marine primary aerosol and secondary organic aerosol precursors. These results demonstrate the difficulties that the GEOS-Chem model has in predicting particle size distributions for the Aitken mode during summertime, which is presumably due to missing processes contributing to particle growth (e.g. the condensation of semi-volatile or low-volatility vapors). Similar discrepancies are also observed in the chemical transport model GLOMAP (Global Model of Aerosol Processes)^{16, 36}, with a low bias observed for either Aitken or Accumulation mode aerosols.

In this study we present direct measurements of size-resolved aerosol chemical composition using mass spectrometry to better understand the processes contributing to aerosol growth during the summertime in the Canadian High Arctic. These measurements, as well as those of aerosol number size distribution, were conducted at Eureka, Nunavut on Ellesmere Island in the Canadian Arctic Archipelago. For comparison, aerosol size distributions measured at Alert, which is located further north on Ellesmere Island, are also reported. Numerous concomitant events in which small particles appear and then grow are observed at both sites throughout the summer, resulting in large variations in the concentration of particles with diameters smaller than 100 nm over Ellesmere Island. The mass spectrometry measurements indicate that these ultrafine particles are predominately organic with a composition that evolves in time during particle growth. Taken together, these results provide important evidence that the condensation of lower volatility organic vapors on particle surfaces leads to frequent particle growth events (e.g. approximately 20 events during summer 2016 at Eureka) observed at two sites on Ellesmere Island.

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

2.2.3. Experimental

2.2.3.1. Field Site Information and Aerosol Sizing Instrumentation

The primary site at which surface aerosol measurements were taken was the Polar Environment Atmospheric Research Laboratory (PEARL)³⁷ located on Ellesmere Island in Nunavut, Canada (80.05° N, 86.42° W). The PEARL Ridge Laboratory (RidgeLab) is located 610 m above sea level and 15 km northeast of the Environment and Climate Change Canada (ECCC) Eureka Weather Station, located at sea level. Radiosondes are launched twice a day from the Weather Station at 00:00 UTC and 12:00 UTC and are used in this work to evaluate the vertical temperature profile and presence of temperature inversions between sea level and the altitude of the RidgeLab. Solar radiation data are measured by a pyranometer (Kipp & Zonen CM 21) at the Surface and Atmospheric Flux, Irradiance and Radiation Extension (SAFIRE) site, situated near Eureka Weather Station at 85 meter from sea level (79.980° N, 85.930° W).

At the PEARL RidgeLab, the instruments sampled year-round through a common aerosol inlet, made of 6 m of stainless steel with a 1 inch outer diameter (OD), sampling 2 m above the roof of the laboratory with a total flow rate of 11 L/min, as previously described by Kuhn et al.³⁸ A scanning mobility particle sizer (SMPS, TSI 3034) measured the aerosol size distribution for diameters between 10 and 487 nm in 54 channels, while an optical particle counter (OPC, Met One GT-526S) measured the aerosol size distribution at diameters between 0.3 and 10 µm in six channels. Both instruments are connected to the common inlet. More precisely, the SMPS flow passes first through 0.8 m of 1 inch OD stainless steel tubing connected to the common aerosol inlet; this flow then enters a 3/8 inch OD stainless steel tube with a length of 0.5 m and finally passes through a 1/4 inch OD copper tube that is 1 m long. For the OPC, the flow passes from the common aerosol inlet into a 1/2 inch OD and 0.5 m long copper tube, and then into a 1/4 inch OD and 0.8 m long copper tube, which is connected to the OPC by 1/4 inch OD and 0.04 m long conductive rubber tubing. Particle transmission efficiency to the SMPS has been calculated and the resulting transmission curve is shown in Figure S1.³⁹

Measurements from these instruments are reported for a period starting in July 2015 through September 2016, and thus consist of one full 2016 summer season and the full summer month of August 2015. (Wintertime measurements are taken too, but are not presented in this

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

article.) Both the OPC and SMPS data are recorded every three minutes, and then subsequently averaged to hourly data for analysis and comparison to other data sets. Agreement between the SMPS and OPC is evaluated by comparing the particle number concentration between 300 – 487 nm measured by the SMPS against the concentration measured by the OPC for approximately the same range of particle diameters (300 – 500 nm). The results are showed in Figure S2 and the agreement is generally satisfactory (slopes = 1.3 and 0.96, R = 0.96 and 0.97, for 2015 and 2016 respectively).

The aerosol size distributions measured at the PEARL RidgeLab are compared against those measured at Alert, Nunavut located 480 km to the northeast, where the surface measurements are conducted at the Dr. Neil Trivett Global Atmosphere Watch Observatory (82.5N, 62.3W), 210 m above sea level. At this site, particle size distributions between 10 and 487 nm are measured using a SMPS (TSI 3034).¹²

2.2.3.2. Aerosol Mass Spectrometer

Between 26 July and 8 September 2015, a quadrupole aerosol mass spectrometer (AMS, Aerodyne Research Inc.) measured the chemical composition of submicron non-refractory aerosol particles at the PEARL RidgeLab.⁴⁰ Both hourly bulk and size-resolved concentrations were measured by switching between mass spectroscopy (MS) and particle time-of-flight (PToF) modes. All data were analyzed using standard AMS software (AMS Analysis Toolkit v1.43) with Igor Pro v6.3.7.2 (WaveMetrics). From the common aerosol inlet, the AMS flow passed first through 0.8 m of 1 inch diameter stainless steel tubing and then through a 3/8 inch diameter stainless steel tube with a length of 0.5 m before entering the AMS. The instrument was calibrated multiple times during the measurement period with 300 nm diameter ammonium nitrate particles to determine the ionization efficiency. The aerodynamic diameter was calibrated using polystyrene latex spheres at 80, 125, 240 and 300 nm. Filtered air was sampled every day to establish the air beam corrections. Aerosol mass measured by the AMS was corrected for the instrumental collection efficiency using the method of Middlebrook et al.⁴¹ The collection efficiency (CE) varied between 0.45 and 0.86 with the increases in CE

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

corresponding to periods when aerosol sulfur was present in its acidic forms (sulphuric acid and ammonium bisulphate) rather than as ammonium sulphate.

To evaluate the accuracy of the AMS measurements, they are compared to PM₁ aerosol concentration determined from the combined SMPS and OPC measurements, as will be discussed later in Section 3. A linear regression analysis of these two quantities resulted in a correlation coefficient of 0.89 and a slope of 1.16. These values confirm that the collection efficiency algorithm from Middlebrook et al.⁴¹ is reasonable.

2.2.3.3. Meteorological Data

Radiosondes (Vaisala RS92-SGP) launched from sea level at the Eureka Weather Station provided different meteorological parameters for altitudes both below and above the PEARL RidgeLab. The radiosondes are launched daily by ECCC meteorological technicians, and the reported data were obtained from the University of Wyoming, Department of Atmospheric Sciences' Upper Air Data Website (<http://weather.uwyo.edu/upperair/sounding.html>). While the resulting measurements provide a means to evaluate the vertical temperature profile, and thus whether the PEARL RidgeLab at 610 m is located within or above the inversion layer, caution must be taken in interpreting the results due to a number of considerations: (1) the ECCC Weather Station is located approximately 11 km in a straight line from the PEARL RidgeLab, (2) the complex terrain in the region, and (3) the radiosondes do not necessarily fly straight up and can meander significantly after launch because of the wind direction. Therefore, the radiosonde measurements do not necessarily reflect the vertical temperature profile nearer the PEARL RidgeLab.

2.2.3.4. Back-Trajectory Analysis

Air mass histories were computed using the FLEXible PARTicle (FLEXPART⁴²) Lagrangian-dispersion model. The tracer particles are inert and non-interacting and are released from the position of the PEARL RidgeLab at an altitude of 610 m above sea level. Backward dispersion runs were initialized by releasing an ensemble of 6000 air-tracer particles over a 6

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

hour period around the time corresponding to the beginning of a growth event as shown in Table 1. FLEXPART was run in backward mode for 6 days driven by meteorological data from the National Centers for Environmental Prediction (NCEP) Climate Forecast System (CFS V2) 6 hourly product⁴³ to calculate the spatially resolved potential emissions sensitivity (PES), which is proportional to the residence time of a tracer above a given grid cell. PES represents the amount of time that an air mass is influenced by emissions within a given grid cell during the duration of the FLEXPART run. In this study, the PES is time-integrated over a period of 6 days before the particle release time.

2.2.4. Results and Discussion

2.2.4.1. Summertime Aerosol Size Distributions

2.2.4.2. Observations at Eureka and Alert

Figure 2-1 shows the aerosol size distributions measured at the PEARL RidgeLab and at Alert for 16 June to 26 September 2016. Particle growth events are evident at both sites. Approximately 40 events with elevated concentrations of small particles (< 20 nm diameter) were observed at the PEARL RidgeLab during this period, 22 of which were followed by growth lasting between 2 to 6 days. The sudden appearance of these Aitken mode particles is consistent with previous field observations performed in the Canadian Arctic during research flights and cruises.^{10-12, 44} While the sources of these particles remains poorly understood, this previous work suggested that the formation and growth of ultrafine particles may be due to marine biological activity and the oxidation of DMS and volatile organic compounds (VOCs). The sustained particle growth observed at the PEARL RidgeLab and at Alert, as well as in the previously published work cited above suggests that there is a significant atmospheric reservoir of chemical compounds with volatilities that are low enough to partition to a condensed phase and could thus also be contributing to the nucleation process. Nevertheless, it is not possible to rule out primary marine emissions as a source of particles that provide the necessary surface area for condensing gases.⁴⁵ During certain events that exhibit the appearance of Aitken mode

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

particles and subsequent growth, there are also signs of successive events that merge into the growth events from previous days, consistent with other observations in the Arctic.⁴⁴

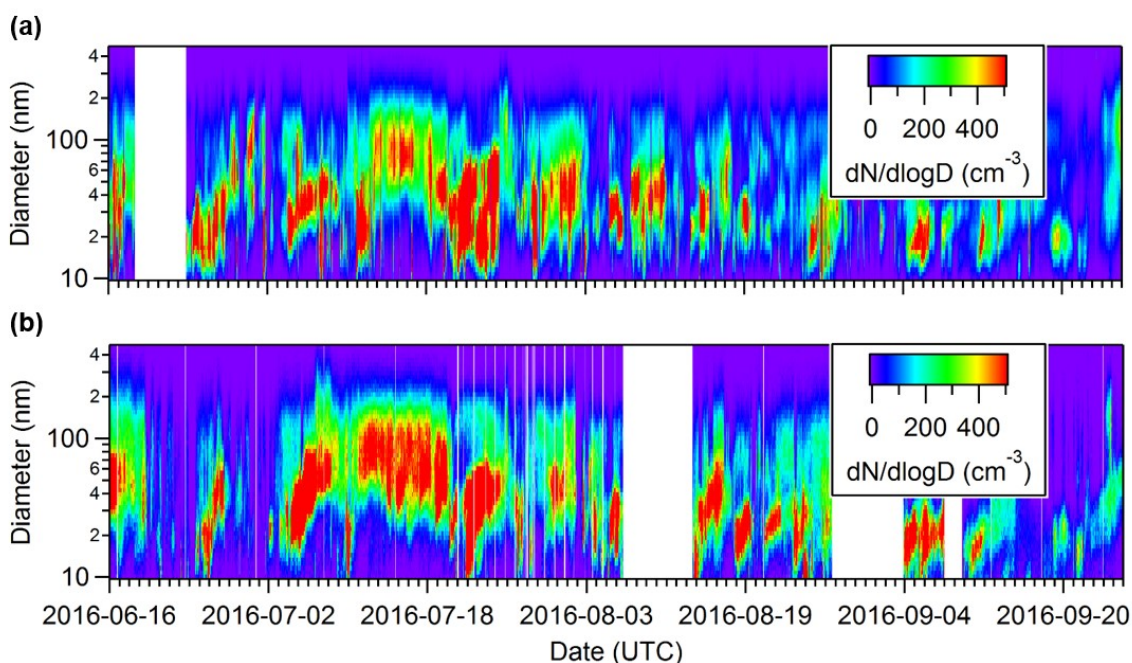


Figure 2-1 The size resolved particle concentration measured by SMPS instruments during summer 2016 in Alert (a) and at the PEARL RidgeLab (b) in the Canadian Arctic Archipelago.

Despite being almost 500 km apart, the particle growth events occurred at similar times at both the PEARL RidgeLab and Alert (Figure 2-1). While simultaneous nucleation events at sites as far apart as 350 km have been observed in continental regions where SO₂ concentrations are high⁴⁶⁻⁴⁷, to our knowledge this work is the first time such a correlation of specific events has been observed in the Arctic, although monthly averages have been previously compared.⁴⁸ It is also important to note substantial topographic barriers exist between the two stations that are located on opposite sides of the Arctic Cordillera, which hinders direct passage of air masses between the two sites (see discussion of back-trajectories in Section 3.1.3). The particle number concentrations measured at the two sites for diameters between 10 and 487 nm are similar for both sites (Figure 2-2a) and the number concentrations of particles between 20 and 70 nm at the two sites show a moderate correlation with a correlation coefficient of 0.61 (Figure 2-2b). These results confirm that the growth events have a tendency to occur at similar times at both sites, demonstrating that conditions can exist in the Arctic that are favourable for aerosol growth over

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

distances of at least 500 km, even though mesoscale circulation at the two sites is likely very different.⁴⁹

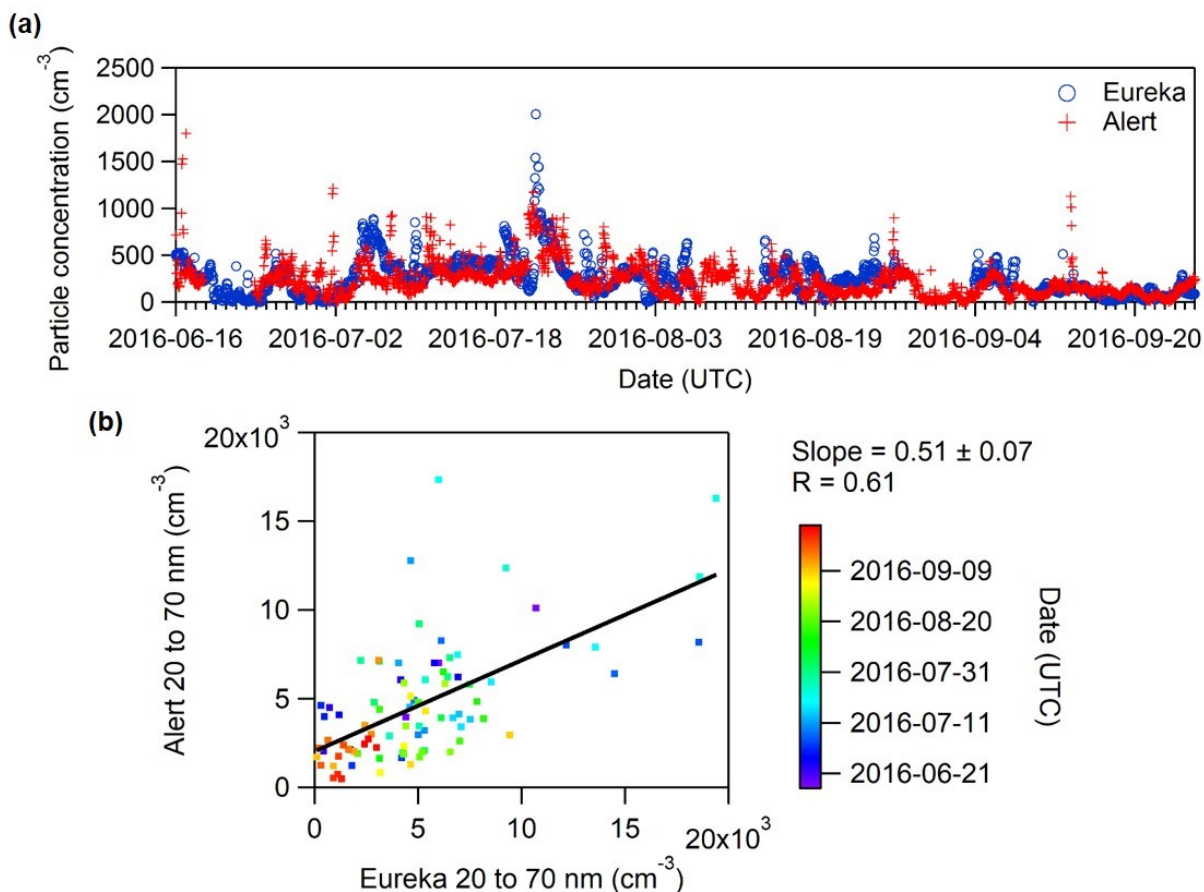


Figure 2-2 Total particle number concentrations measured at the PEARL RidgeLab near Eureka and in Alert during summer 2016 for sizes between 10 – 487 nm (a). Scatter plot showing the correlation of the particle number concentrations measured in Alert and near Eureka (b). The data in the scatter plot correspond to particle diameters between 20 and 70 nm.

Similar to Figure 2-1, the aerosol size distributions at the PEARL RidgeLab and Alert were measured for a portion of summer 2015 (26 July to 26 September 2015) as shown in the bottom panels of Figure 2-3. Again there is a clear association of Aitken mode particles and their subsequent growth at the two sites, leading to the conclusion that the similarities in growth events at the two sites is not specific to 2016.

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

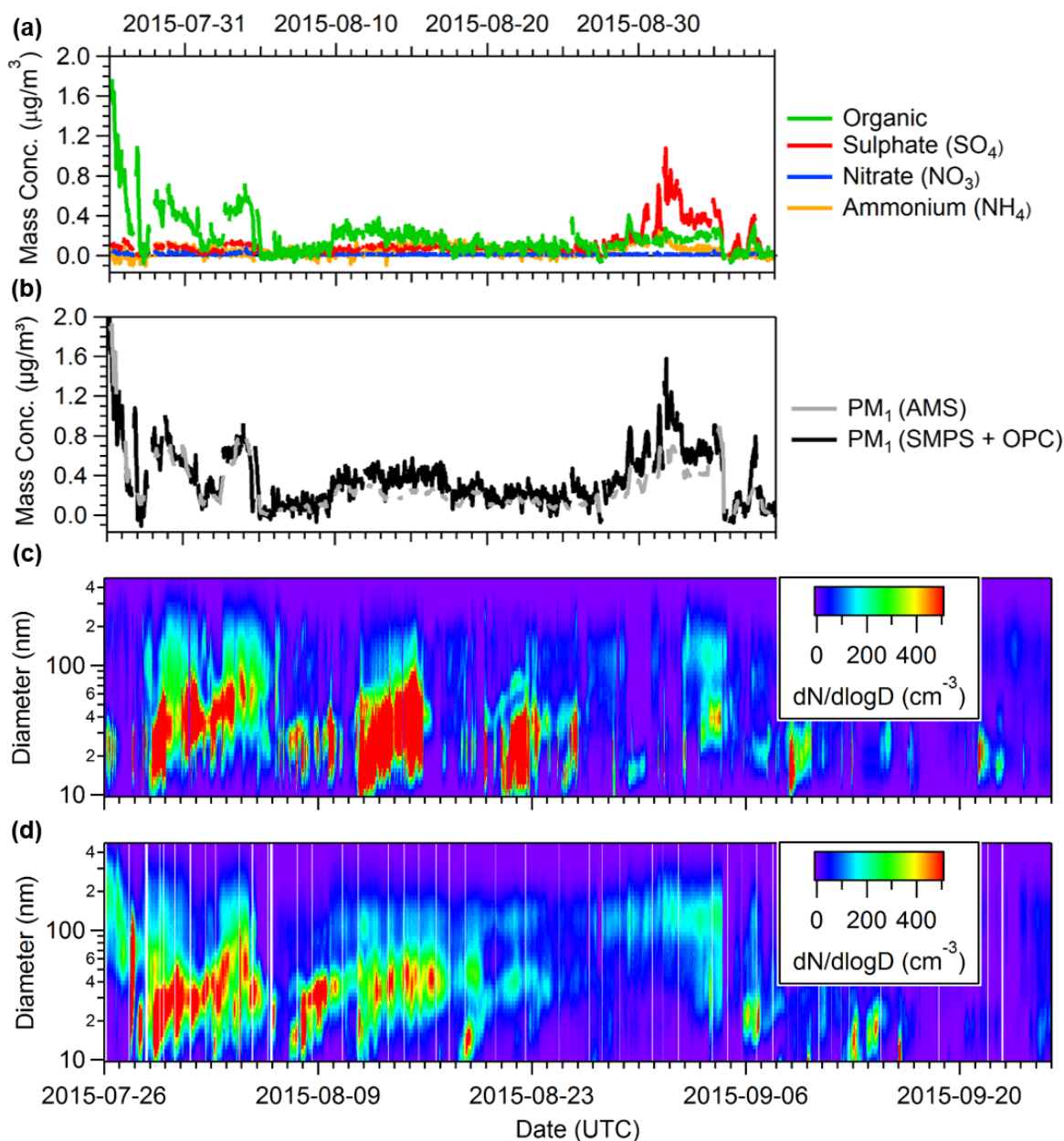


Figure 2-3 Aerosol mass spectrometry measurements of aerosol composition taken at the PEARL RidgeLab near Eureka (a). The total concentration of non-refractory PM_{10} aerosol measured by the mass spectrometer is also compared against the total PM_{10} concentration measured by the SMPS and OPC, and exhibits good agreement with a linear regression analysis yielding a slope of 1.16 and a correlation coefficient of 0.89 (b). In addition, the size resolved particle concentration measured by SMPS instruments during summer 2015 in Alert (c) and at the PEARL RidgeLab (d) are shown in the bottom two panels. All data are plotted on the same time scale.

In order to evaluate the influence of the appearance of small particles and growth events on the particle number concentrations at the two sites, the total concentration measured by the SMPS is summarized in Figure 2-4 in a series of box and whisker plots for 2015 and 2016. (Data

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

are only shown for the period of 27 July to 9 September, since measurements at Eureka were unavailable before 27 July 2015.) It is observed that the particle concentrations are similar at the two sites for period studied. For Eureka, the plots indicate a slight increase in the 10th, 25th, 50th, 75th and 90th percentiles in 2016 compared to 2015. In addition, there are similar increases in the particle concentration for Alert when comparing the two years, except for the 90th percentile which is much higher in 2015.

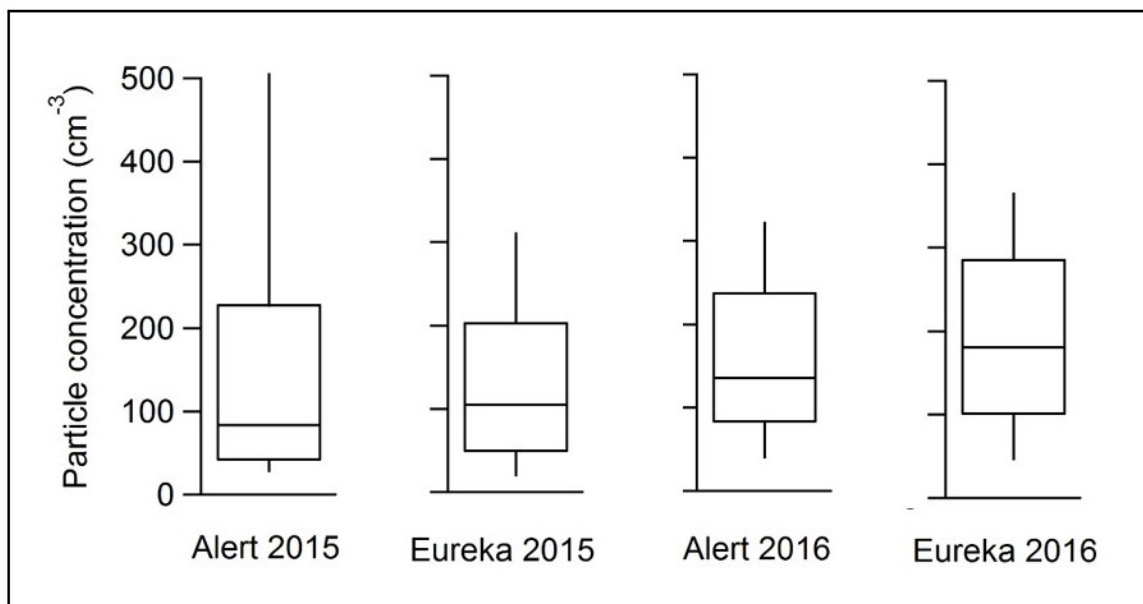


Figure 2-4 Box and whiskers plots of the total particle number concentrations (for diameters between 10 – 487 nm) measured during summer 2015 and during summer 2016 in Alert and at the PEARL RidgeLab near Eureka. The data plotted correspond to the period of 27 July to 9 September for both years. The plots indicate the 10th, 25th, 50th, 75th and 90th percentiles.

During this year, two events with very elevated particle concentration were observed at Alert and coinciding events were observed at Eureka, but at Eureka the particles concentrations were much lower, which explain the higher 90th percentile in 2015 at Alert. The reason for the occurrence of these events is unknown. Except for this deviation, the particle number concentrations at the two sites are in general rather similar in both 2015 and 2016. It is important to note that for the summer 2016, the mean is approximately 50 – 100 particles cm⁻³ higher than the results shown in Figure 2-4 if the data for the entire summer of 2016 are used to calculate the percentages. This observation is explained by the fact that the total duration of the growth events is longer in June and July compared to the months of August and September.

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

2.2.4.3. Case Studies of Aerosol Growth Events

To further analyze the growth events and periods with elevated concentrations of ultrafine particles, two different sets of case studies were selected comprising five (Table 2-1) or 28 events (Table 2-2). The 28 events represent all the growth events observed during the measurement period, and the smaller set is used to calculate growth rates because the events do not overlap with proceeding or subsequent growth events and exhibit relatively smooth growth curves. For the smaller set of case studies near Eureka, the measured particle size distributions are shown in Figure 2-5, along with the temperature profiles measured using radiosondes launched from the Eureka Weather Station. The initial growth rates are also included in Table 2-1.⁵⁰⁻⁵²

Table 2-1 Particle growth rates for five growth events during the summers of 2015 and 2016.

Growth Event Number	Time period (UTC)				Growth rate (nm/h)
	Start		End		
GE 3 (Eureka)	2015-07-29	05:00	2015-07-30	11:00	0.420 ± 0.004
GE 3 (Alert)	2015-07-29	03:00	2015-07-30	12:00	0.50 ± 0.02
GE 6 (Eureka)	2015-08-02	04:00	2015-08-03	05:00	0.12 ± 0.08
GE 30 (Eureka)	2016-06-25	14:00	2016-06-27	20:00	1.01 ± 0.08
GE 32 (Eureka)	2016-07-04	05:00	2016-07-09	07:00	0.44 ± 0.01
GE 38 (Eureka)	2016-07-21	19:00	2016-07-25	19:00	0.352 ± 0.004

Looking more closely at the meteorology of the five growth events, one can evaluate the optimal conditions that favor the presence of the growth events at the PEARL RidgeLab. In particular, the absence of an inversion below the PEARL RidgeLab would correspond to air masses measured at the site that are more influenced by local, less photochemically aged and possibly marine sources. In contrast, if the sources of aerosol mass during growth are the sea or the land surface and within the stable stratification, then these influences are expected to be less important when an inversion is present below the PEARL RidgeLab. Figure 2-5 demonstrates that while temperature inversions that terminate with a maximum below 600 m (the altitude of the PEARL RidgeLab) do sometimes exist before or at the beginning of a growth event, the presence of such inversions is infrequent and often weak (less than 2°C). These inversion

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

conditions will thus result in air masses measured by the instruments at PEARL that are directly influenced by local emissions near or below the PEARL RidgeLab.

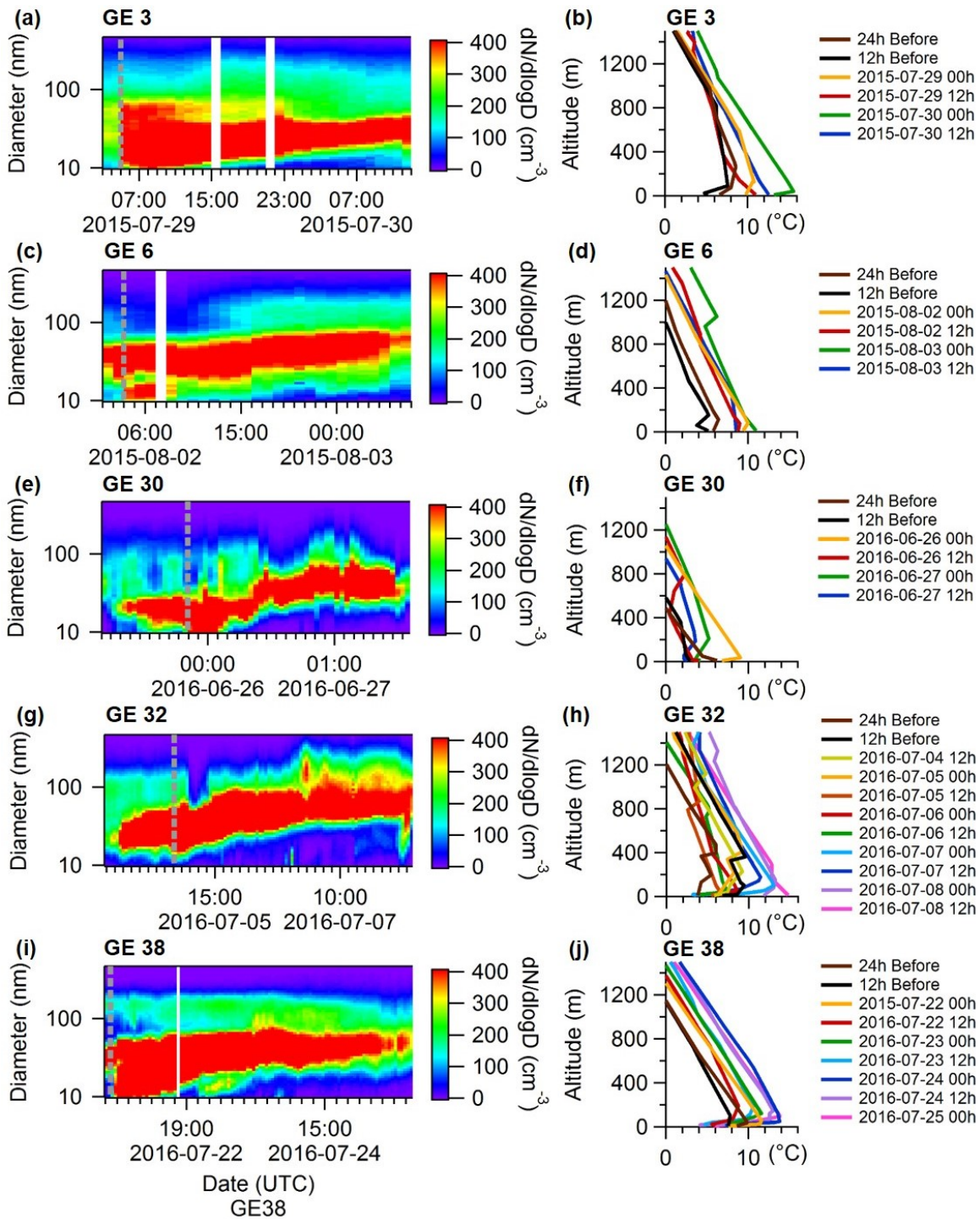


Figure 2-5 Five selected growth events near Eureka; the grey dashed line indicates the start of the growth event (a, c, e, g, i). In the right column, vertical temperature profiles every 12h during growth events are shown, including one day prior (24h) to the start of the growth event (b, d, f, h, j).

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

Furthermore, to more systematically analyze the growth events for the summers of 2015 and 2016 at the PEARL RidgeLab, a histogram of the number of events binned by the average inversion temperature (i.e. the temperature at the top of the inversion minus that at the bottom) during each event is plotted in Figure 2-6. (All the growth events used in creating Figure 2-6 are summarized in Table 2-2 and the particle size distributions are shown in Figure 2-11.) One can see a clear tendency that particle growth events (and presumably nucleation) are more commonly observed when the inversion is weaker or not present.

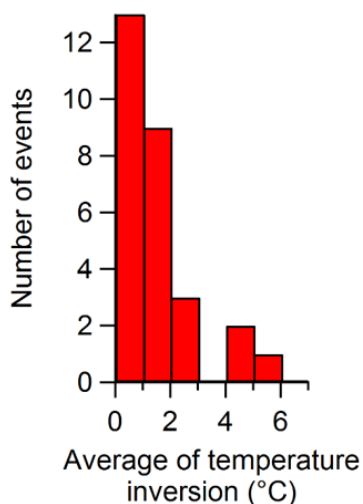


Figure 2-6 Histogram of the number of growth events near Eureka, binned by the average change in the temperature from 10 to 600 m above sea level. The average temperature change of each event is provided in Table 2-2, and is calculated from radiosonde measurements, as shown in Figure 2-5.

Thus, it can be concluded from Figure 2-6 that the observation of growth events is more likely when the air at the PEARL RidgeLab is influenced by more recent surface emissions that are likely less photochemically aged. In contrast, when the inversion is strong, the aerosol and aerosol precursor species are more chemically aged due to slower transport into the free troposphere and thus the existing particles have already grown to sizes corresponding to the accumulation mode. A few growth events are observed when the temperature inversion is larger, which may be due to the fact that the radiosondes are launched at the Eureka Weather Station located 11 km to the southwest of the PEARL RidgeLab. Thus, the temperature profile measured by a radiosonde may not be fully representative of that at the RidgeLab. Nevertheless, the observations reported here are consistent with previous work^{10, 44} suggesting that similar events measured in the Canadian Arctic are attributable to marine sources.

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

Many previous studies have characterized aerosol growth rates in remote regions including the Arctic. In particular, Collins et al.⁴⁴ reported growth rates ranging from 0.2 – 15.3 nm h⁻¹ during two research cruises conducted in the Canadian Arctic. Using the same analysis method, growth rates ranging from 0.1 – 1.0 nm h⁻¹ were determined for the aerosols at the PEARL RidgeLab and at Alert; these values (Table 2-1) are similar to the range reported in Collins et al. and similar to those reported by Nieminen et al.⁵³ for Alert. Furthermore, the growth rates are similar for all the events analyzed in Table 2-1, with an average and a standard deviation of 0.5 nm hr⁻¹ and 0.3 nm hr⁻¹, respectively. This finding suggests that the atmospheric processes (e.g. the condensation of semi-volatile or low volatility vapors to the particle surfaces as discussed below) and conditions governing the growth events are rather consistent in this study.

2.2.4.4. Back-Trajectory Analysis

To understand the influence of the air mass history on the occurrence of the growth events, back-trajectories were calculated using FLEXPART (Figure 2-12). This calculation permits the evaluation with precision of the spatial distribution of the potential emissions sensitivity at the beginning of each growth event. In general, these calculations show that the aerosols measured at the PEARL RidgeLab are mostly influenced by source regions located in the Canadian Arctic Archipelago, in Baffin Bay and to the north of Ellesmere Island. However, the analyzed growth events do not have the same air mass history. Five of the growth events are impacted by air from the area of Baffin Bay and the Canadian Arctic Archipelago (GE 3 at both Eureka and Alert, GE 6, GE 32, and GE 38). These results mostly coincide with the research reported by Collins et al.⁴⁴, in which they observed high concentrations of ultrafine particles in these regions. On the other hand, for growth event 30, which began on 25 June 2016, the FLEXPART calculation indicated a different air mass history compared to the four other growth events. Specifically, the FLEXPART back-trajectory for growth event 30 shows an influence from areas near and further north of Alert, and there is a small contribution from areas in the Nares Strait. Interestingly, NASA WorldView Images (<https://worldview.earthdata.nasa.gov/>) show that on 25 June 2016 and for several preceding days the ocean in these regions was mostly

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

covered in sea-ice, but there were large areas of open water. In conclusion, growth events can occur within air masses with different back-trajectories, as also reported by Collins et al.⁴⁴, but this work extends this finding to a new domain of the Arctic and to a greater number of growth events. Lastly, by comparing the back-trajectories for GE 3 at Eureka and at Alert one finds that the simultaneous growth events have both similar growth rates and similar back-trajectories.

2.2.4.5. Aerosol Bulk and Size Resolved Chemical Composition

AMS measurements of aerosol composition and concentration for the summer of 2015 are shown in Figure 2-3a and b, where one sees the mass concentrations for the four dominant types of non-refractory aerosol. During two major growth events in July and August (GE 3 and GE 6), it can be seen that the aerosol organic fraction represents a large majority of the aerosol mass. In contrast, later in the year there is a period of larger particle diameters, and during this period the mass concentration of sulphate is higher than the organic component (approximately 30 August 2015 to 5 September 2015).

While sulphate is a key contributor to nucleation at lower latitudes and is an oxidation product of dimethyl sulphide (DMS) from marine emissions, relatively little sulphate is observed during growth events. At the same time, the observation of relatively high bulk organic aerosol concentrations during Arctic summer is consistent with previous analyses of organic aerosol functional groups in samples collected at Alert.⁵⁴ Since the bodies of water in the vicinity of Eureka were relatively open and not covered in sea ice during this period, the water may have been a source of precursors to the observed aerosol mass, which would be consistent with the correlation of the occurrence of growth events and the breakdown of the temperature inversion below the altitude of the PEARL RidgeLab. It is possible that methanesulphonic acid (MSA), an atmospheric oxidation product of DMS, could be contributing to the overall organic mass.⁵⁵ However, when the mass spectra for GE 3 and GE 6 are compared against that measured for MSA in the laboratory (Figure 2-13)⁵⁶, it is observed that the ambient spectra are very different from the MSA spectrum. In particular, the relative intensity of m/z 79 is much lower in the ambient spectra. Furthermore, in the MSA spectrum the sulphate fragments at m/z 48 and 64 are much greater than the organic fragments at m/z 43 and 44 whereas the organic fragments

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

have greater intensity in the ambient spectra. Lastly, the correlation coefficient for the two average ambient mass spectra ($R = 0.84$) is much higher than the correlation coefficient between each ambient spectrum and the spectrum measured for MSA ($R = 0.60$ and 0.48 for GE 3 and GE 6 versus MSA, respectively). When taken together, these differences between the ambient and MSA mass spectra indicate that other organics are contributing to the aerosol mass besides MSA.

Following the measurement of the bulk aerosol composition shown in Figure 2-3, the dependence of the composition on the particle size is analyzed in Figure 2-7. The PToF data reveal that the smallest particles sampled by the AMS (less than 100 nm in diameter) during two different growth events were enriched in organics, with little to no sulphate. Above 100 nm, the measured aerosol composition changes depending on the particle size and the larger aerosol particles contain a greater fraction of sulphate.

To further evaluate the organic aerosol composition only, two important fragments in the measured mass spectra of the organic aerosol, m/z 43 and 44, are plotted in Figure 2-7e and Figure 2-7f. For the organic aerosol, m/z 44 corresponds to the concentration of carboxylic acids, whereas m/z 43 correlates with other oxygen containing functional groups in the particle phase (e.g. alcohols). The size-resolved measurements of these fragments show that the organic composition varies with particle size. The smallest particles are less oxidized, with the fraction of carboxylic acids increasing with the particle diameter between 100 and 500 nm. While this relative trend is observed for both growth events, the absolute ratios of m/z 43 to m/z 44 are not the same, which indicates some variation in the amount of oxidation of the organic aerosol during growth events. Overall, the size-resolved measurements indicate that for the two growth events analyzed here, which occurred during summer 2015, the mass of the growing particles is predominately organic matter.

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

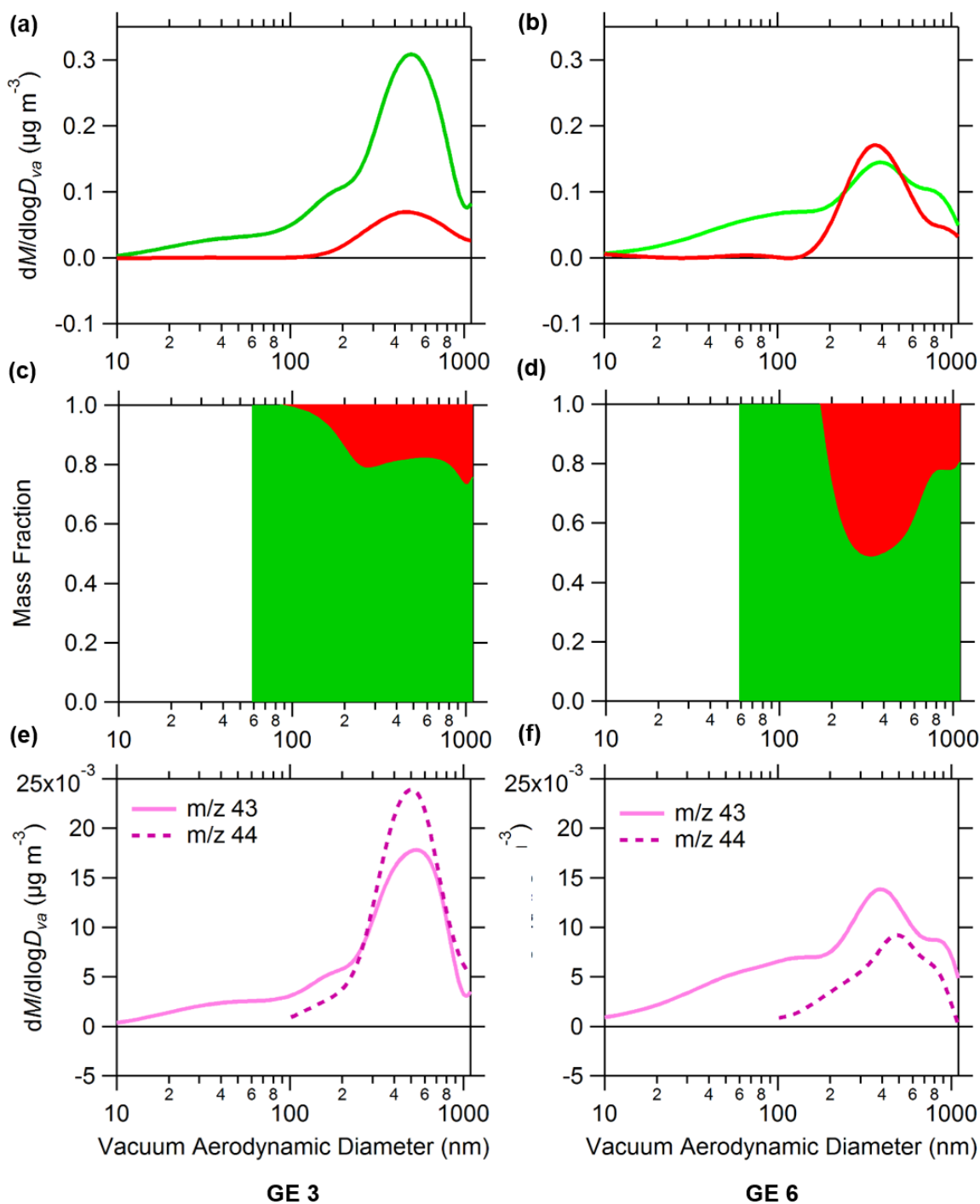


Figure 2-7 Size-resolved aerosol chemical composition for GE 3 (a, c, e) and GE 6 (b, d, f) measured near Eureka. The absolute organic and sulfate aerosol mass concentration (a, b), the corresponding mass fractions (c, d), and the nitrate-equivalent mass concentration of the m/z 43 and 44 fragments (e, f) are shown for each growth event. The data for m/z 44 is not shown below 100 nm due interference from gaseous CO₂.

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

To complement the analysis of the organic aerosol composition shown in Figure 2-7, the fractions of the total organic mass measured at m/z 43 and at m/z 44 (abbreviated as f_{43} and f_{44}) are plotted against each other in Figure 2-8, in which the data are colored as a function of time. Lambe et al.⁵⁷ demonstrated in a series of lab studies that secondary organic aerosol (SOA) formed from a variety of different precursors, both anthropogenic and biogenic, falls within a well-defined space in the f_{44} versus f_{43} plot, which is shown as the black triangle in Figure 2-8.

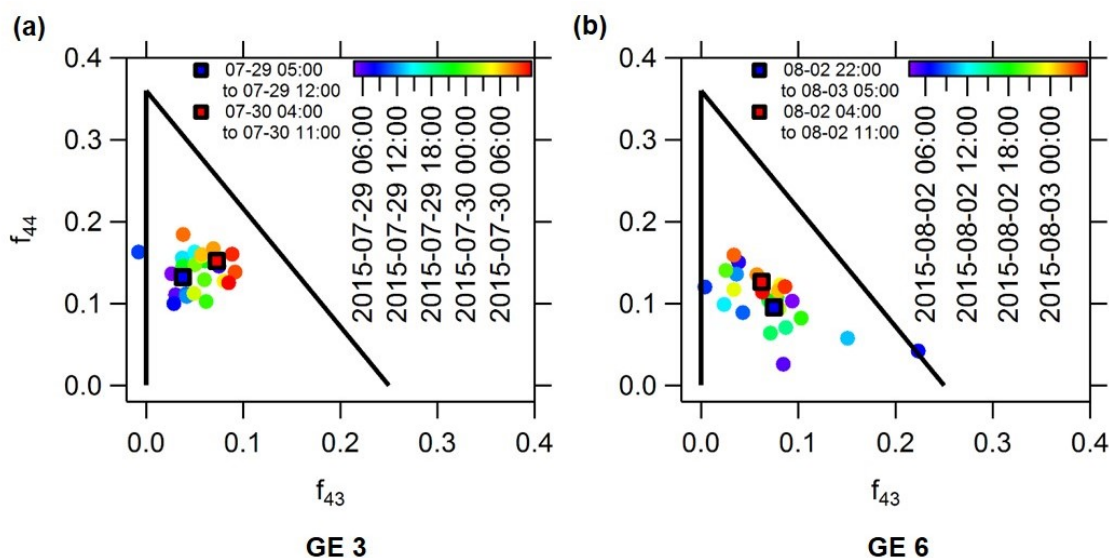


Figure 2-8 Scatter plot of the organic aerosol fraction measured at m/z 43 versus that measured at m/z 44 during GE 3 (a) and GE 6 (b) near Eureka. Also shown are the average values corresponding to the first seven and final seven hours of the growth event.

The organic aerosols measured at the PEARL RidgeLab have f_{44} and f_{43} ratios that are consistent with the previous work of Lambe et al. and others.⁵⁸ Furthermore, the f_{44} and f_{43} values for the seven hours at the beginning or at the end of each growth event were averaged and plotted in Figure 2-8 in order to evaluate the overall change in SOA composition. For GE 3, there is a clear trend during the evolution of the growth event wherein both f_{44} and f_{43} increase, which is consistent with an increase in the relative concentration of carboxylic acids and non-acid oxygenates in the organic aerosol. For GE 6, the change in composition is less evident. The value of f_{44} increases, but f_{43} decreases, and in addition the trend with time is not as clear as for GE 3. A possible explanation for the decrease in f_{43} during GE 6 is a decrease in the $C_3H_7^+$ fragment, which originates from alkyl groups in the organic aerosol. Regardless, one can conclude that the aerosol growth events coincide with an increase in the amount of oxidation of the organic aerosol likely due to, in part, the production of carboxylic acids. This finding is

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

consistent with the size-resolved composition measurements shown in Figure 2-7, where smaller particles have a higher fraction of m/z 43 and larger particles formed later during the growth events have a higher fraction of m/z 44.

In summary, the concentration and evolution of oxygenated organics as well as the presence of small organic particles measured by the AMS together suggest that SOA formation contributes to particle growth measured at the PEARL RidgeLab. While the origin of the SOA precursors is not known, it can be concluded that the organic composition is not consistent with SOA formation from MSA alone. Recently published work has suggested that marine microbial processes may be an important source of these VOCs.⁴⁴ Abiotic heterogeneous processes in the marine boundary layer may also be a source of oxidized VOCs as indicated in several laboratory studies.⁵⁹⁻⁶⁰ Consistent with this previous research, the first growth event observed at the PEARL RidgeLab in 2016, coincided approximately with the melting of the sea ice in the Slidre Fjord and the Eureka Sound located to the south and west of the PEARL RidgeLab. Observations of the sea ice taken from the PEARL RidgeLab are shown in the Supporting Information (Figure 2-14). The pictures show, for summer 2016, the sea ice during the first (25 June 2016) and last (10 September 2016) growth events. Also shown are two additional images. One is of the first time that open water is observed (14 July 2016), and the other is the last available image of the sea ice for 2016 (28 September 2016). On 25 June, it is not possible to see regions of open water during the first growth event. However, open water is observed 300 km to the south of Eureka on the same day in NASA worldview images (<https://worldview.earthdata.nasa.gov/>). Moreover, the NASA worldview images show open water on 7 July in Eureka Sound and Slidre Fjord. It should also be noted that the first growth event occurred much later than the polar sunrise, which was approximately 21 February 2016. During the last observed growth event (10 September 2016) there is very little or no sea ice, and open water is observed to be persistent until the end of September. This is consistent with measurements of DMS and MSA at Alert which show relatively high concentrations persisting into September.^{12, 61} Given these observations, there is a possible relationship between the onset of the growth events and the melting of the sea ice in the region around Eureka. This observation is consistent with back-trajectory analyses showing that newly formed particles measured during summertime cruises in the Arctic Ocean are associated with air that has experienced more open water or melting sea ice region.⁶²⁻⁶³ Whereas, the decrease in the number of events in September

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

is more likely due to the lack of solar radiation as shown in Figure 2-15 or measured previously at Alert⁶¹, which limits photochemistry. This finding supports the recent suggestion that photochemical processing of emissions from the ocean may be a source of ultrafine particles in the Arctic.⁴⁴

2.2.5. Conclusions

In this study, new particle growth events were characterized during the summers of 2015 and 2016 at the PEARL RidgeLab (in Eureka, Nunavut, Canada) as well as at Alert, Canada. Both sites are located on Ellesmere Island separated by a distance of 480 km providing an opportunity to evaluate the growth events on a regional scale for the complete 2016 summer season as well as for a portion of the 2015 summer season. During both years, frequent growth events occurred and these events were correlated between the sites. In addition to the concomitant events, the particle concentrations measured at Alert and the PEARL RidgeLab were similar, with the 10th, 25th, 50th, 75th and 90th percentiles not varying by more than a factor of 1.67 suggesting the growth events are not isolated local events. Additionally, the analysis of the growth rates from a subset of events at the PEARL RidgeLab and Alert gives an average rate of particle growth of 0.5 (\pm 0.3) nm hr⁻¹. In total, the measurements of the particle number size distribution support the conclusion that particle nucleation and growth events occur over regional spatial scales in the Canadian Arctic Archipelago.

Moreover, in this study AMS measurements showed that particles smaller than 100 nm in diameter are predominately organic with the organic-to-sulphate ratio increasing for smaller particle sizes. This result is in contrast to previous indirect measurements of aerosol composition using a volatility tandem differential mobility analyzer system installed near Ny-Ålesund, Svalbard⁶⁴, which suggested that the Aitken mode particles were predominately ammonium sulphate, although it was not possible in that study to conclusively distinguish ammonium sulphate from organics with similar volatility. The amount of oxidation of the organic fraction also changes with particle size, with the ratio of m/z 43 to m/z 44 increasing for smaller particle sizes, which is consistent with a greater fraction of non-acid oxygenates relative to carboxylic acids. The relative concentrations of oxygenated organics were also analyzed in plots of f₄₄

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

against f_{43} , and it was observed that the oxidation of the organic aerosol mass tends to increase during the growth events. Overall, the AMS measurements support the conclusion that condensation of organic vapors contributes to particle growth.

It has been recently suggested that secondary organic aerosols formed from VOCs emitted by marine sources may be an important source of ultrafine particles in the Arctic during summertime. The results of the research presented here are consistent with this possibility. In addition to the SMPS and AMS measurements discussed above, when comparing the growth events against the inversion layer height and temperature change, the growth events are most likely to reach the PEARL RidgeLab when the inversion is non-existent or weak allowing the site's instruments to sample the boundary layer which presumably contains fresh marine emissions. In addition, the onset of the growth events approximately coincides with the opening of the sea ice near the PEARL RidgeLab, rather than polar sunrise. However, future work should focus on the incorporation of more sea ice data as well as further gas phase measurements to understand the timing and chemical processes driving particle nucleation and growth.

2.2.6. Acknowledgements

This work was partially supported by the Université de Montréal and the Natural Science and Engineering Research Council of Canada (Discovery Grant RGPIN/05002-2014, Discovery Grant RGPIN-2014-05173 and Climate Change and Atmospheric Research (CCAR) Program funding awarded to the Probing the Atmosphere of the High Arctic (PAHA) project led by PI James R. Drummond). Support from Environment and Climate Change Canada (ECCC) for the Arctic field work performed at both Eureka and Alert is also acknowledged. The co-authors also acknowledge Canadian Forces Station Alert for the maintenance of Alert base. The authors also acknowledge the use of the FLEXPART Lagrangian dispersion model (<https://www.flexpart.eu/wiki/FpDownloads>) and the use of the Pflexible Python module (<https://bitbucket.org/jfburkhart/pflexible>) developed by John F. Burkhardt, which was modified here to plot the FLEXPART sensitivities in this paper. The NCEP CFS data used are listed in the references. Radiation measurements have received support from ECCC, CANDAC and the Arctic Research Program of the NOAA Climate Program Office.

**Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the
summers of 2015 and 2016**

2.2.7. Supporting information

Table 2-2 List of all growth events observed near Eureka during the summers of 2015 and 2016.

Event Number	Date and Time (UTC)				Average temp. change from 10 to 600 m (°C)
	Start		End		
GE 1	2015-07-27	18:00	2015-07-28	03:00	2.00
GE 3	2015-07-29	05:00	2015-07-30	11:00	1.10
GE 6	2015-08-02	04:00	2015-08-03	05:00	0.20
GE 9	2015-08-07	03:00	2015-08-08	05:00	0.00
GE 10	2015-08-07	21:00	2015-08-09	02:00	1.23
GE 15	2015-08-18	12:00	2015-08-19	04:00	1.28
GE 27	2016-06-15	00:00	2016-06-17	18:00	1.20
GE 28	2016-06-17	00:00	2016-06-18	13:00	2.25
GE 30	2016-06-25	20:00	2016-06-27	14:00	1.30
GE 32	2016-07-05	01:00	2016-07-08	09:00	2.91
GE 33	2016-07-08	07:00	2016-07-09	01:00	0.00
GE 34	2016-07-09	20:00	2016-07-13	18:00	4.89
GE 37	2016-07-20	18:00	2016-07-22	03:00	1.80
GE 38	2016-07-21	19:00	2016-07-25	17:00	5.77
GE 39	2016-07-27	02:00	2016-07-27	17:00	0.47
GE 43	2016-08-03	18:00	2016-08-04	14:00	0.07
GE 45	2016-08-05	03:00	2016-08-05	23:00	0.00
GE 46	2016-08-05	21:00	2016-08-06	17:00	0.00
GE 47	2016-08-13	19:00	2016-08-17	12:00	0.46
GE 48	2016-08-17	23:00	2016-08-19	20:00	0.00
GE 49	2016-08-20	23:00	2016-08-22	15:00	0.00
GE 51	2016-08-23	19:00	2016-08-25	15:00	0.18
GE 53	2016-08-26	19:00	2016-08-27	20:00	2.27
GE 54	2016-09-04	01:00	2016-09-05	09:00	1.45
GE 55	2016-09-05	09:00	2016-09-06	01:00	4.30
GE 56	2016-09-05	15:00	2016-09-08	01:00	0.56
GE 58	2016-09-10	12:00	2016-09-12	16:00	1.28
GE 59	2016-09-19	00:00	2016-09-20	06:00	0.15

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

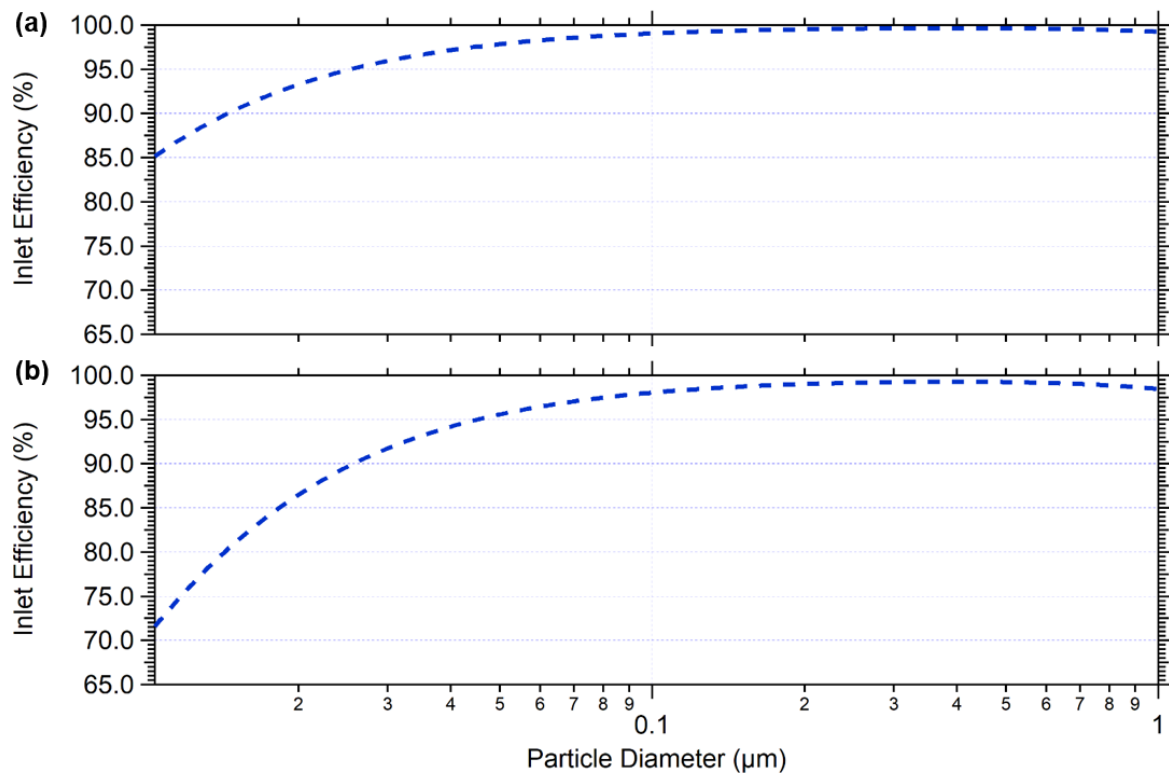


Figure 2-9 Inlet particle transmission efficiency for the AMS (a) and SMPS (b) at the PEARL RidgeLab.

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

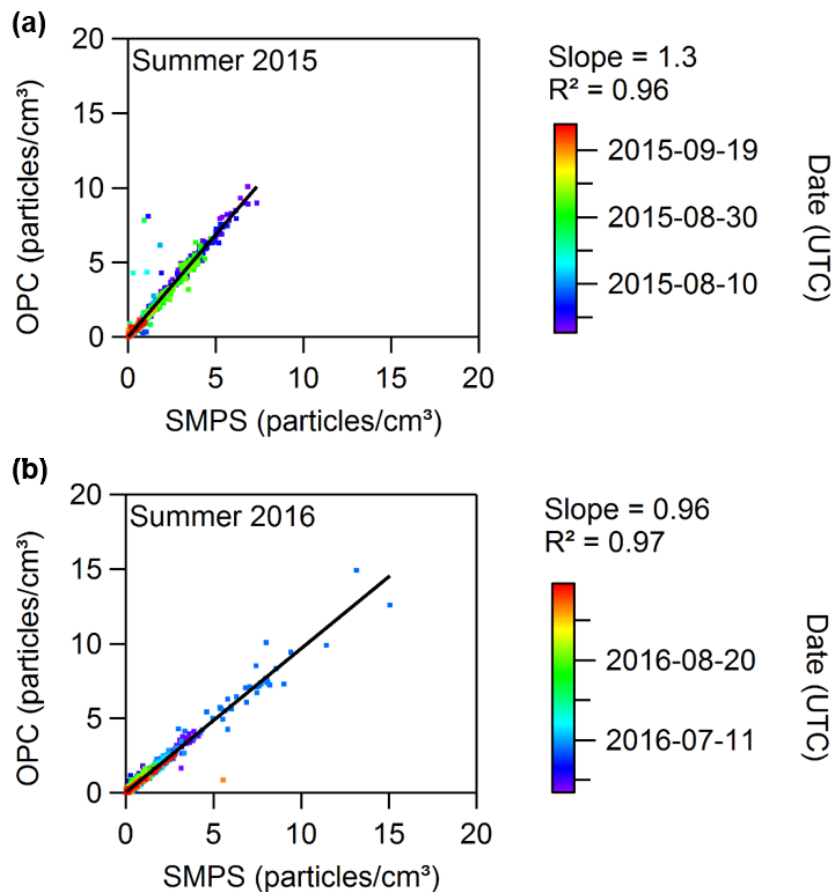


Figure 2-10 Scatter plots of the particle number concentrations measured by the SMPS (300 – 487 nm) and the OPC (300 – 500 nm) near Eureka for the summers of 2015 (a) and 2016 (b).

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

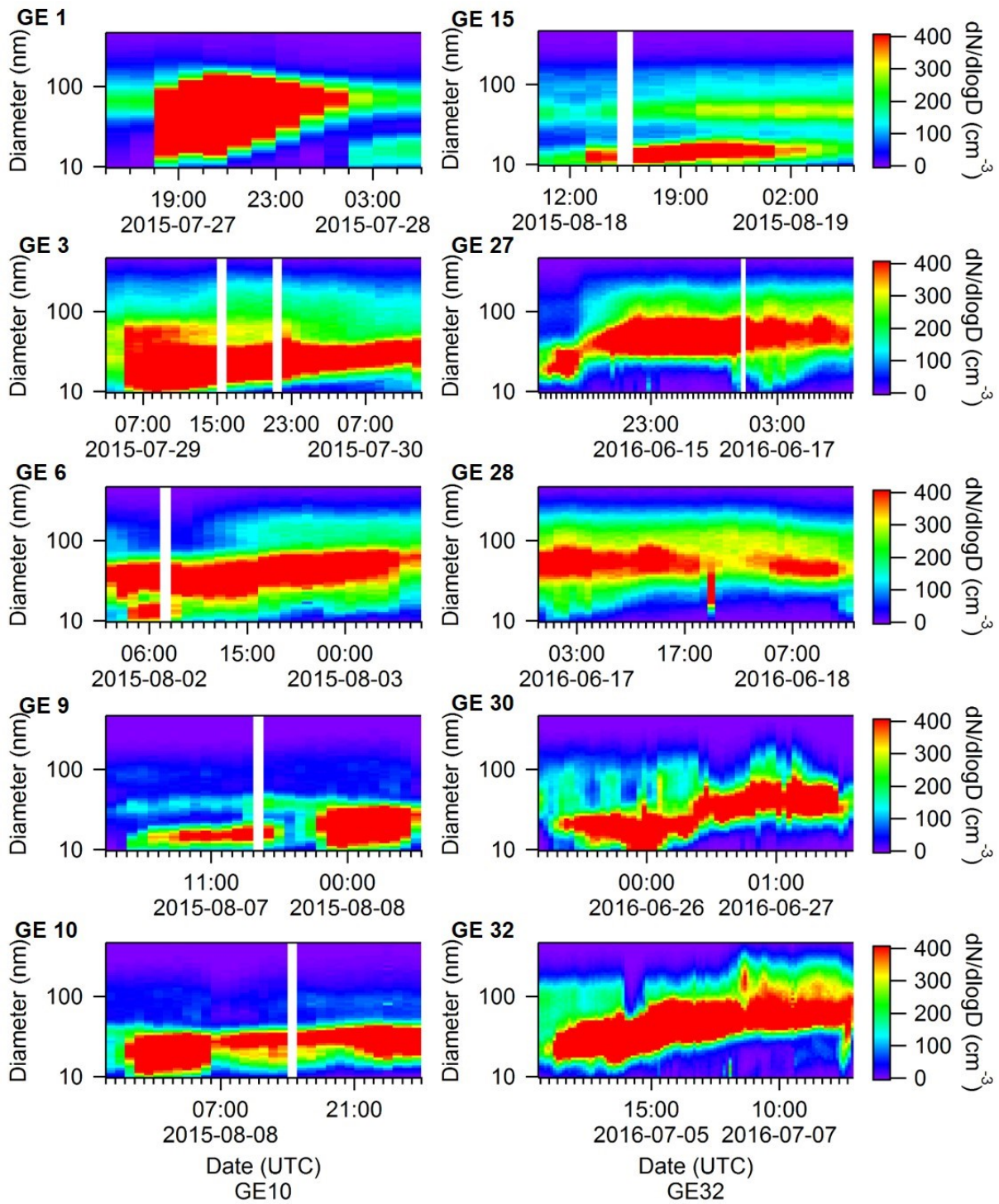


Figure 2-11 SMPS measurements of each growth event observed near Eureka during the summers of 2015 and 2016 as summarized in Table 2-2 and GE 3 at Alert.

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the
summers of 2015 and 2016

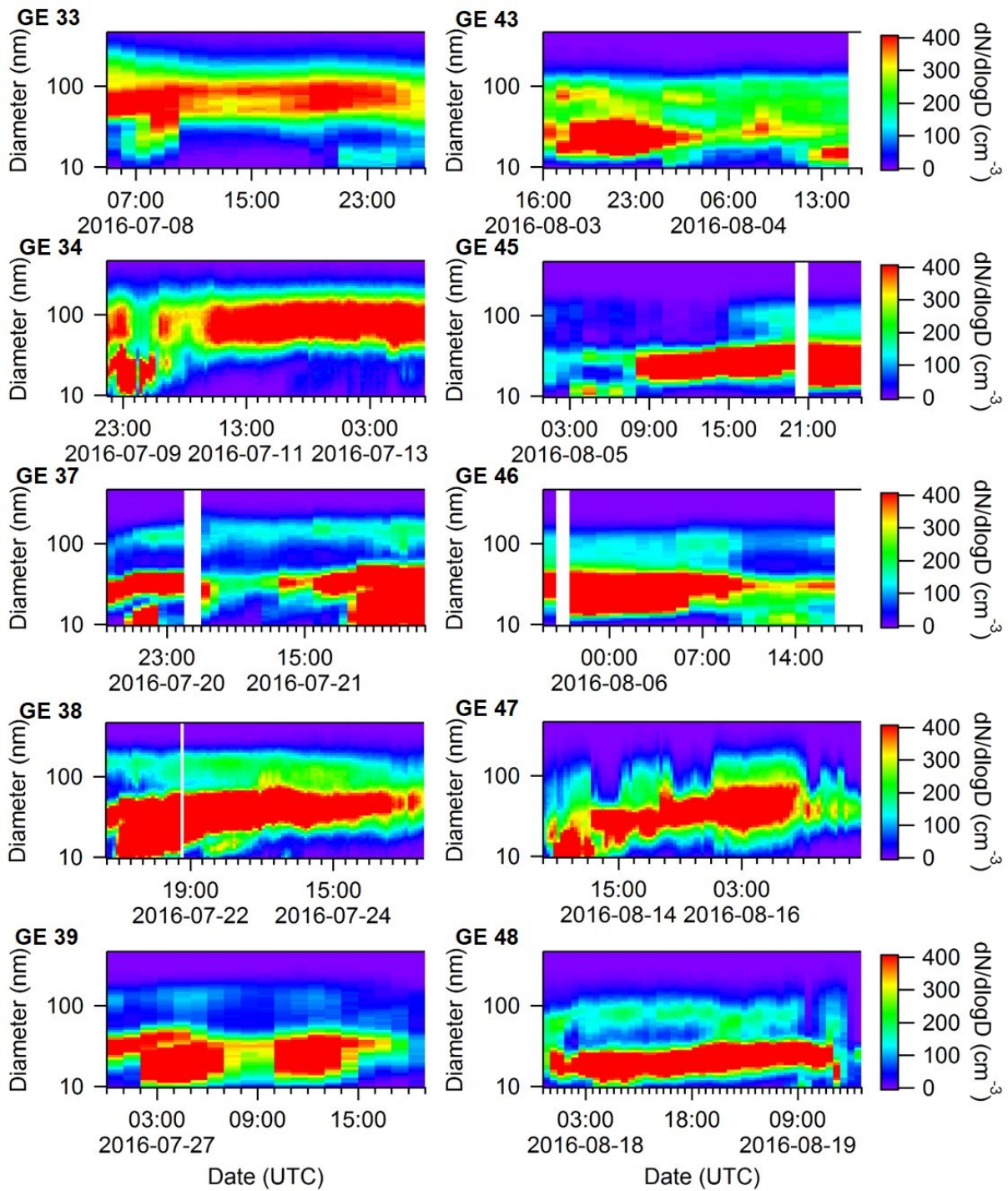


Figure 2-11 SMPS measurements of each growth event observed near Eureka during the summers of 2015 and 2016 as summarized in Table 2-2 and GE 3 at Alert (continued).

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

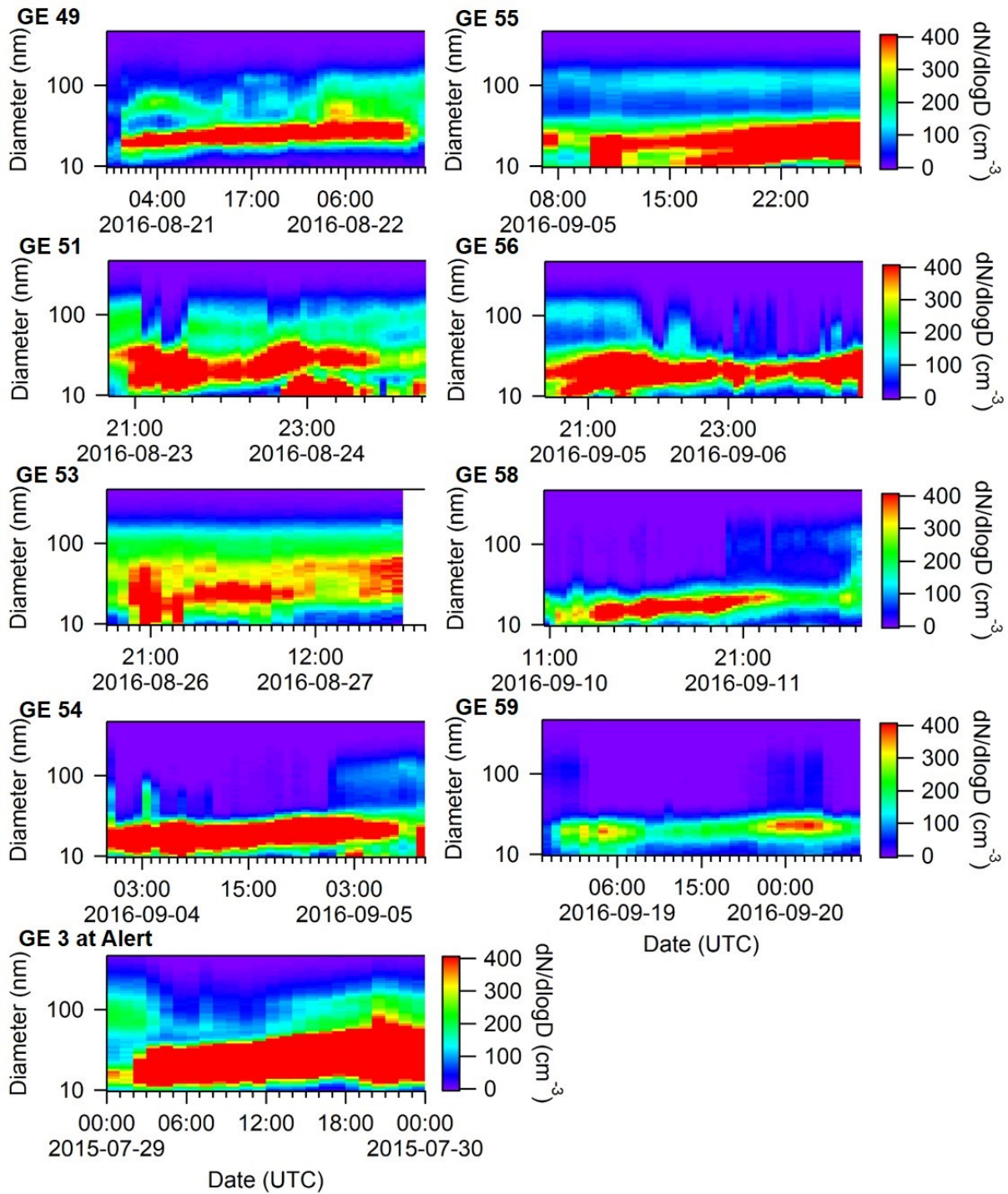


Figure 2-11 SMPS measurements of each growth event observed near Eureka during the summers of 2015 and 2016 as summarized in Table 2-2 and GE 3 at Alert (continued).

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

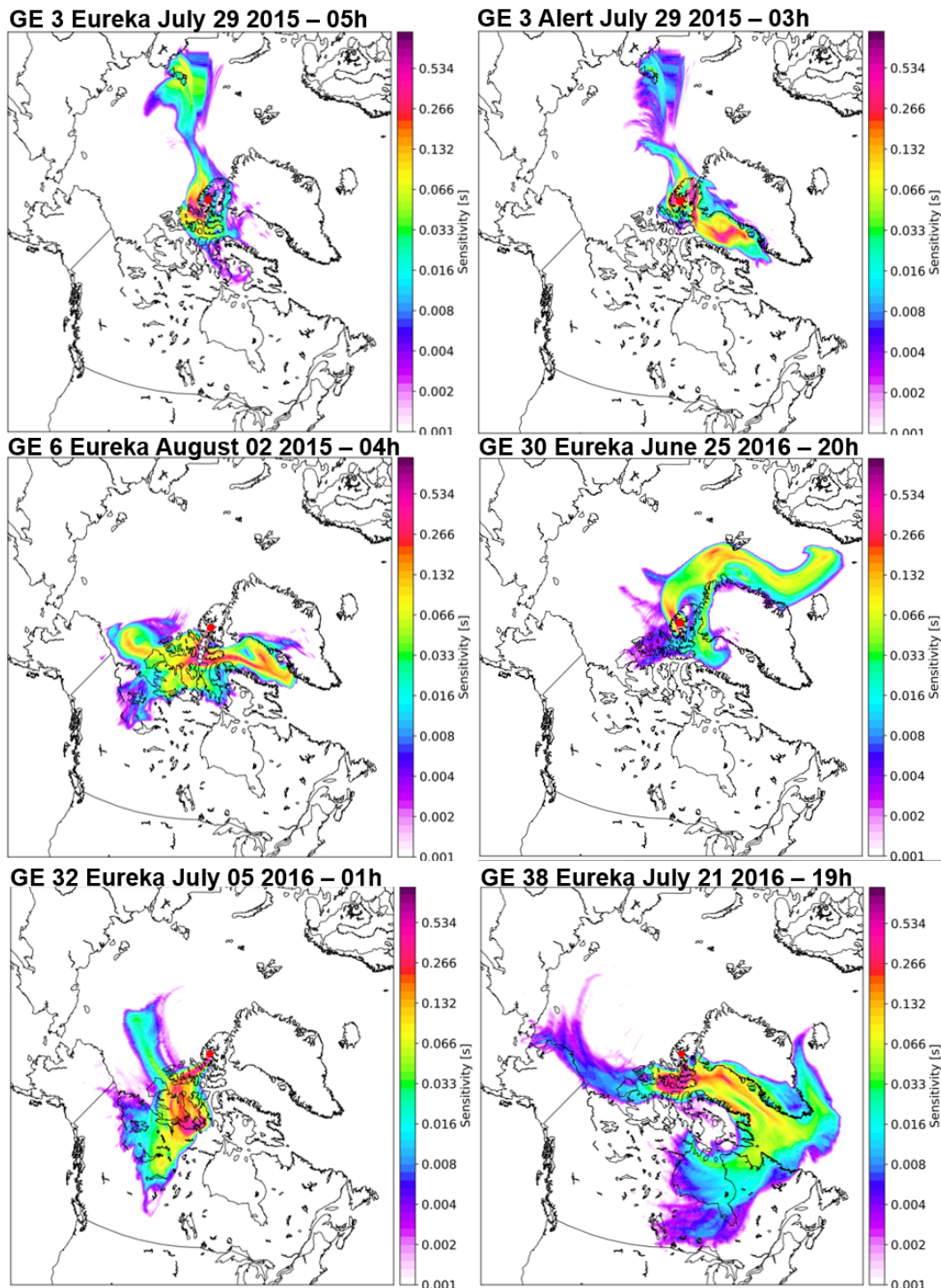


Figure 2-12 Evaluation of the air mass history during the six selected growth events summarized in Table 2-1 and shown in Figure 2-5 of the main text. The back-trajectory and potential emissions sensitivity are calculated using FLEXPART.

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

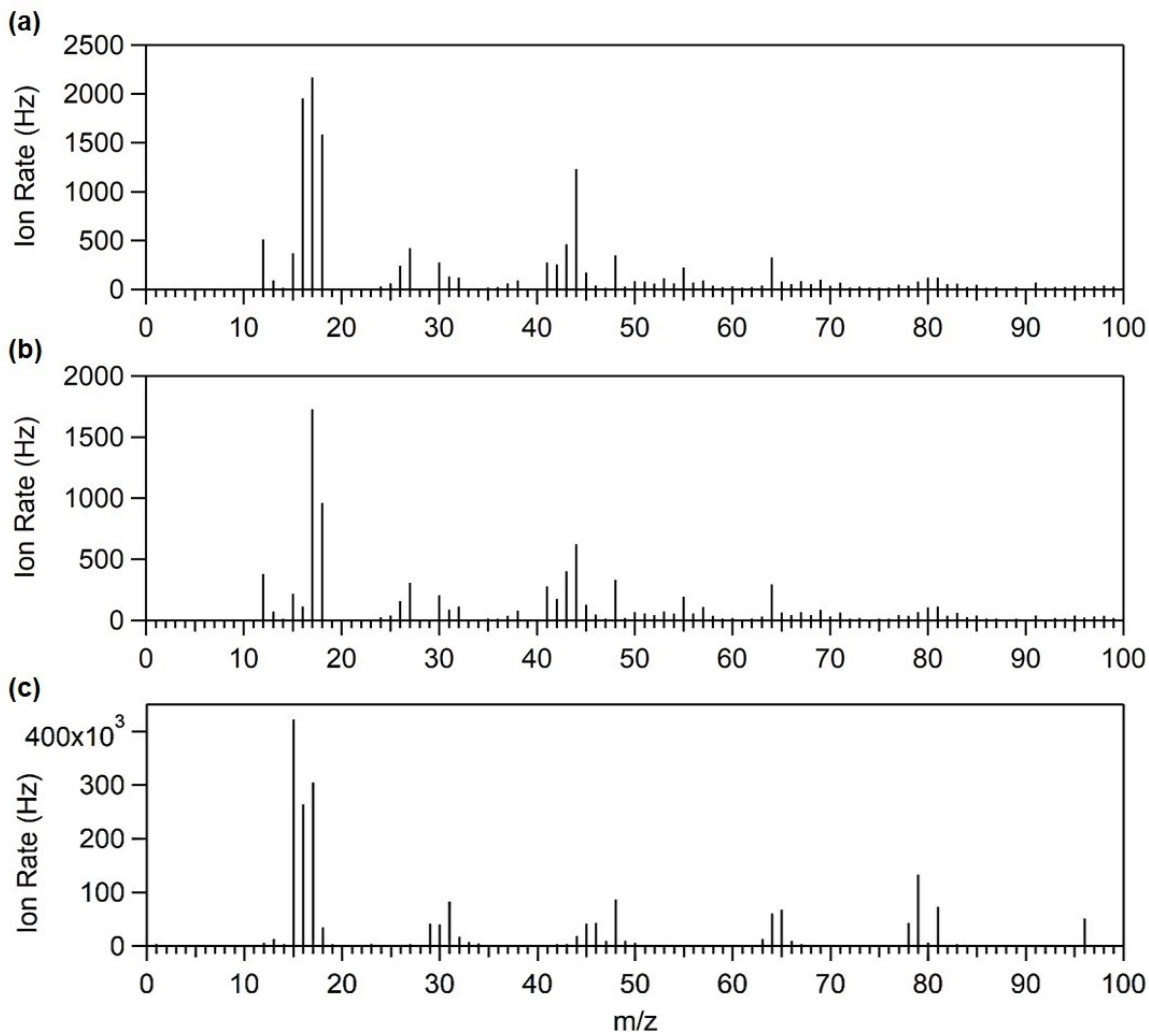


Figure 2-13 AMS average ambient aerosol mass spectrum of GE 3 (a) and GE 6 (b) compared with the mass spectrum of MSA (c).

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

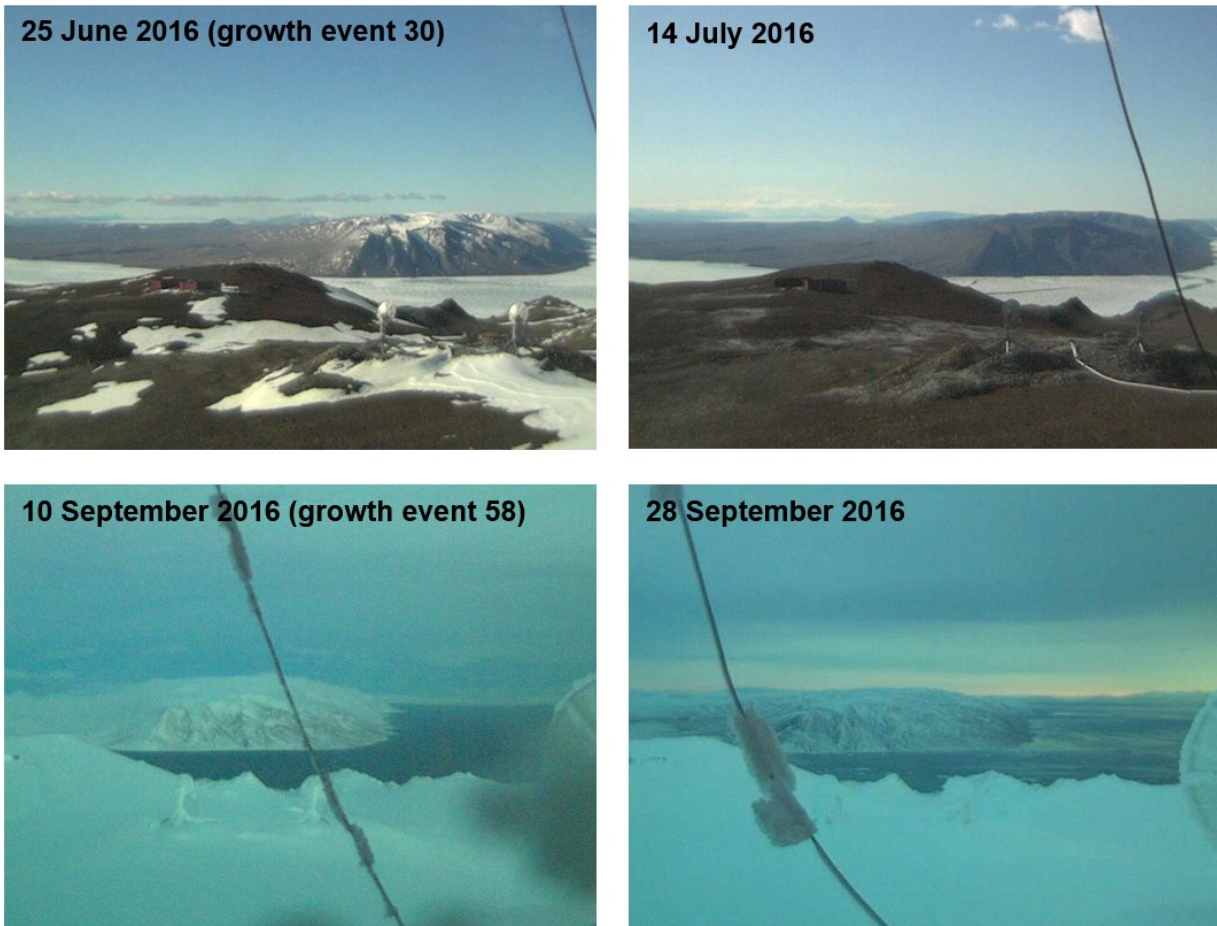


Figure 2-14 Photos from the PEARL RidgeLab, at 610 m above sea level. The images correspond to: the first observed growth event for 2016 (25 June), the first time open water is observed (14 July), the last observed growth event for 2016 (10 September), and the last image available for the year (28 September) due to poor visibility related to meteorological conditions as well as polar sunset.

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

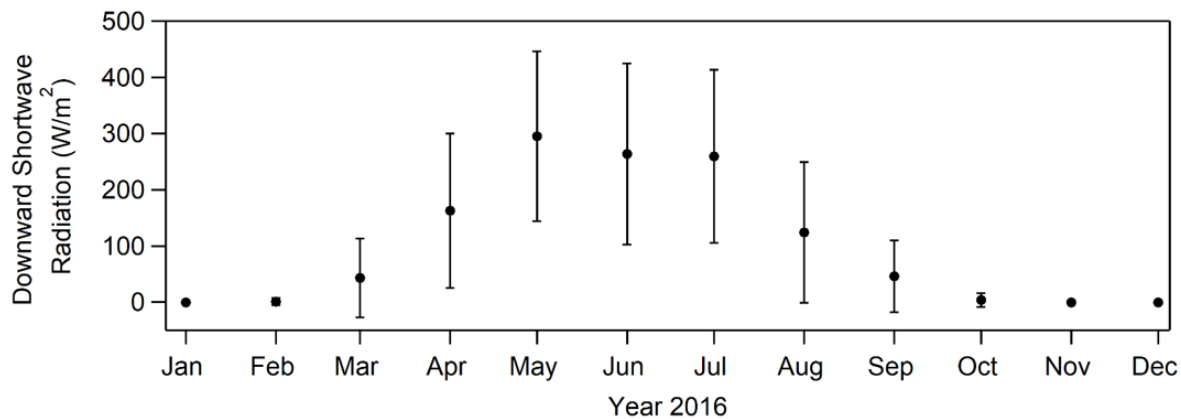


Figure 2-15 Average by month of the downwelling shortwave radiation for the year 2016 at Eureka, as measured at the SAFIRE facility at 85 m above sea level. The standard deviation of the one-minute average fluxes for each month is indicated along with the average.

2.2.8. References (Chapitre 2)

1. Sharma, S.; Lavoue, D.; Cachier, H.; Barrie, L. A.; Gong, S. L., Long-term trends of the black carbon concentrations in the Canadian Arctic. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* **2004**, *109* (D15), D15203.
2. Quinn, P. K.; Shaw, G.; Andrews, E.; Dutton, E. G.; Ruoho-Airola, T.; Gong, S. L., Arctic haze: current trends and knowledge gaps. *Tellus Series B-Chemical and Physical Meteorology* **2007**, *59* (1), 99-114.
3. Engvall, A. C.; Krejci, R.; Strom, J.; Treffeisen, R.; Scheele, R.; Hermansen, O.; Paatero, J., Changes in aerosol properties during spring-summer period in the Arctic troposphere. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2008**, *8* (3), 445-462.
4. Nguyen, Q. T.; Glasius, M.; Sorensen, L. L.; Jensen, B.; Skov, H.; Birmili, W.; Wiedensohler, A.; Kristensson, A.; Nojgaard, J. K.; Massling, A., Seasonal variation of atmospheric particle number concentrations, new particle formation and atmospheric oxidation capacity at the high Arctic site Villum Research Station, Station Nord. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2016**, *16* (17), 11319-11336.
5. Sharma, S.; Ishizawa, M.; Chan, D.; Lavoue, D.; Andrews, E.; Eleftheriadis, K.; Maksyutov, S., 16-year simulation of Arctic black carbon: Transport, source contribution, and sensitivity analysis on deposition. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* **2013**, *118* (2), 943-964.
6. Tunved, P.; Strom, J.; Krejci, R., Arctic aerosol life cycle: linking aerosol size distributions observed between 2000 and 2010 with air mass transport and precipitation at Zeppelin station, Ny-Alesund, Svalbard. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2013**, *13* (7), 3643-3660.
7. Croft, B.; Martin, R. V.; Leaitch, W. R.; Tunved, P.; Breider, T. J.; D'Andrea, S. D.; Pierce, J. R., Processes controlling the annual cycle of Arctic aerosol number and size distributions. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2016**, *16* (6), 3665-3682.
8. Stohl, A., Characteristics of atmospheric transport into the Arctic troposphere. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* **2006**, *111* (D11), D11306.
9. Fu, P. Q.; Kawamura, K.; Chen, J.; Charriere, B.; Sempere, R., Organic molecular composition of marine aerosols over the Arctic Ocean in summer: contributions of primary emission and secondary aerosol formation. *Biogeosciences* **2013**, *10* (2), 653-667.
10. Willis, M. D.; Burkart, J.; Thomas, J. L.; Kollner, F.; Schneider, J.; Bozem, H.; Hoor, P. M.; Aliabadi, A. A.; Schulz, H.; Herber, A. B.; Leaitch, W. R.; Abbatt, J. P. D., Growth of nucleation

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

mode particles in the summertime Arctic: a case study. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2016**, *16* (12), 7663-7679.

11. Chang, R. Y. W.; Sjostedt, S. J.; Pierce, J. R.; Papakyriakou, T. N.; Scarratt, M. G.; Michaud, S.; Levasseur, M.; Leaitch, W. R.; Abbatt, J. P. D., Relating atmospheric and oceanic DMS levels to particle nucleation events in the Canadian Arctic. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* **2011**, *116*, D00s03.

12. Leaitch, W. R.; Sharma, S.; L., H.; Toom-Saunty, D.; Chivulescu, A.; Macdonald, A. M.; von Salzen, K.; Pierce J., R.; Bertram, A. K.; Schroder, J. C.; Shantz, N. C.; Chang, R. Y.-W.; A.-L., N., Dimethyl sulfide control of the clean summertime Arctic aerosol and cloud. *Elem Sci Anth. Elementa Science of the Anthropocene* **2013**, *1*, 17.

13. Croft, B.; Wentworth, G. R.; Martin, R. V.; Leaitch, W. R.; Murphy, J. G.; Murphy, B. N.; Kodros, J. K.; Abbatt, J. P. D.; Pierce, J. R., Contribution of Arctic seabird-colony ammonia to atmospheric particles and cloud-albedo radiative effect. *Nature Communications* **2016**, *7*, 13444.

14. Clarke, A. D.; Owens, S. R.; Zhou, J. C., An ultrafine sea-salt flux from breaking waves: Implications for cloud condensation nuclei in the remote marine atmosphere. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* **2006**, *111* (D6), D06202.

15. Hoppel, W. A.; Frick, G. M.; Larson, R. E., Effect of nonprecipitating clouds on the aerosol size distribution in the marine boundary-layer. *Geophysical Research Letters* **1986**, *13* (2), 125-128.

16. Browse, J.; Carslaw, K. S.; Mann, G. W.; Birch, C. E.; Arnold, S. R.; Leck, C., The complex response of Arctic aerosol to sea-ice retreat. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2014**, *14* (14), 7543-7557.

17. Charlson, R. J.; Schwartz, S. E.; Hales, J. M.; Cess, R. D.; Coakley, J. A.; Hansen, J. E.; Hofmann, D. J., Climate forcing by anthropogenic aerosols. *Science* **1992**, *255* (5043), 423-430.

18. Twomey, S., The Influence of Pollution on the Shortwave Albedo of Clouds. *Journal of the Atmospheric Sciences* **1977**, *34* (7), 1149-1152.

19. Lohmann, U.; Feichter, J., Global indirect aerosol effects: a review. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2005**, *5*, 715-737.

20. Kirkby, J.; Curtius, J.; Almeida, J.; Dunne, E.; Duplissy, J.; Ehrhart, S.; Franchin, A.; Gagne, S.; Ickes, L.; Kurten, A.; Kupc, A.; Metzger, A.; Riccobono, F.; Rondo, L.; Schobesberger, S.; Tsagkogeorgas, G.; Wimmer, D.; Amorim, A.; Bianchi, F.; Breitenlechner, M.; David, A.; Dommen, J.; Downard, A.; Ehn, M.; Flagan, R. C.; Haider, S.; Hansel, A.; Hauser, D.; Jud, W.;

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

Junninen, H.; Kreissl, F.; Kvashin, A.; Laaksonen, A.; Lehtipalo, K.; Lima, J.; Lovejoy, E. R.; Makhmutov, V.; Mathot, S.; Mikkila, J.; Minginette, P.; Mogo, S.; Nieminen, T.; Onnela, A.; Pereira, P.; Petaja, T.; Schnitzhofer, R.; Seinfeld, J. H.; Sipila, M.; Stozhkov, Y.; Stratmann, F.; Tome, A.; Vanhanen, J.; Viisanen, Y.; Virtala, A.; Wagner, P. E.; Walther, H.; Weingartner, E.; Wex, H.; Winkler, P. M.; Carslaw, K. S.; Worsnop, D. R.; Baltensperger, U.; Kulmala, M., Role of sulphuric acid, ammonia and galactic cosmic rays in atmospheric aerosol nucleation. *Nature* **2011**, *476* (7361), 429-U77.

21. Almeida, J.; Schobesberger, S.; Kurten, A.; Ortega, I. K.; Kupiainen-Maatta, O.; Praplan, A. P.; Adamov, A.; Amorim, A.; Bianchi, F.; Breitenlechner, M.; David, A.; Dommen, J.; Donahue, N. M.; Downard, A.; Dunne, E.; Duplissy, J.; Ehrhart, S.; Flagan, R. C.; Franchin, A.; Guida, R.; Hakala, J.; Hansel, A.; Heinritzi, M.; Henschel, H.; Jokinen, T.; Junninen, H.; Kajos, M.; Kangasluoma, J.; Keskinen, H.; Kupc, A.; Kurten, T.; Kvashin, A. N.; Laaksonen, A.; Lehtipalo, K.; Leiminger, M.; Leppa, J.; Loukonen, V.; Makhmutov, V.; Mathot, S.; McGrath, M. J.; Nieminen, T.; Olenius, T.; Onnela, A.; Petaja, T.; Riccobono, F.; Riipinen, I.; Rissanen, M.; Rondo, L.; Ruuskanen, T.; Santos, F. D.; Sarnela, N.; Schallhart, S.; Schnitzhofer, R.; Seinfeld, J. H.; Simon, M.; Sipila, M.; Stozhkov, Y.; Stratmann, F.; Tome, A.; Trostl, J.; Tsagkogeorgas, G.; Vaattovaara, P.; Viisanen, Y.; Virtanen, A.; Virtala, A.; Wagner, P. E.; Weingartner, E.; Wex, H.; Williamson, C.; Wimmer, D.; Ye, P. L.; Yli-Juuti, T.; Carslaw, K. S.; Kulmala, M.; Curtius, J.; Baltensperger, U.; Worsnop, D. R.; Vehkamäki, H.; Kirkby, J., Molecular understanding of sulphuric acid-amine particle nucleation in the atmosphere. *Nature* **2013**, *502* (7471), 359-369.

22. Napari, I.; Noppel, M.; Vehkamäki, H.; Kulmala, M., Parametrization of ternary nucleation rates for H₂SO₄-NH₃-H₂O vapors. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* **2002**, *107* (D19), 4381.

23. Allen, M. R.; Stott, P. A.; Mitchell, J. F. B.; Schnur, R.; Delworth, T. L., Quantifying the uncertainty in forecasts of anthropogenic climate change. *Nature* **2000**, *407* (6804), 617-620.

24. Zhang, R. Y.; Wang, L.; Khalizov, A. F.; Zhao, J.; Zheng, J.; McGraw, R. L.; Molina, L. T., Formation of nanoparticles of blue haze enhanced by anthropogenic pollution. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* **2009**, *106* (42), 17650-17654.

25. Riipinen, I.; Yli-Juuti, T.; Pierce, J. R.; Petaja, T.; Worsnop, D. R.; Kulmala, M.; Donahue, N. M., The contribution of organics to atmospheric nanoparticle growth. *Nature Geoscience* **2012**, *5* (7), 453-458.

26. Pierce, J. R.; Leitch, W. R.; Liggio, J.; Westervelt, D. M.; Wainwright, C. D.; Abbatt, J. P. D.; Ahlm, L.; Al-Basheer, W.; Cziczo, D. J.; Hayden, K. L.; Lee, A. K. Y.; Li, S. M.; Russell, L. M.; Sjostedt, S. J.; Strawbridge, K. B.; Travis, M.; Vlasenko, A.; Wentzell, J. J. B.; Wiebe, H. A.; Wong, J. P. S.; Macdonald, A. M., Nucleation and condensational growth to CCN sizes during a sustained pristine biogenic SOA event in a forested mountain valley. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2012**, *12* (7), 3147-3163.

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

27. Trostl, J.; Chuang, W. K.; Gordon, H.; Heinritzi, M.; Yan, C.; Molteni, U.; Ahlm, L.; Frege, C.; Bianchi, F.; Wagner, R.; Simon, M.; Lehtipalo, K.; Williamson, C.; Craven, J. S.; Duplissy, J.; Adamov, A.; Almeida, J.; Bernhammer, A. K.; Breitenlechner, M.; Brilke, S.; Dias, A.; Ehrhart, S.; Flagan, R. C.; Franchin, A.; Fuchs, C.; Guida, R.; Gysel, M.; Hansel, A.; Hoyle, C. R.; Jokinen, T.; Junninen, H.; Kangasluoma, J.; Keskinen, H.; Kim, J.; Krapf, M.; Kurten, A.; Laaksonen, A.; Lawler, M.; Leiminger, M.; Mathot, S.; Mohler, O.; Nieminen, T.; Onnela, A.; Petaja, T.; Piel, F. M.; Miettinen, P.; Rissanen, M. P.; Rondo, L.; Sarnela, N.; Schobesberger, S.; Sengupta, K.; Sipila, M.; Smith, J. N.; Steiner, G.; Tome, A.; Virtanen, A.; Wagner, A. C.; Weingartner, E.; Wimmer, D.; Winkler, P. M.; Ye, P. L.; Carslaw, K. S.; Curtius, J.; Dommen, J.; Kirkby, J.; Kulmala, M.; Riipinen, I.; Worsnop, D. R.; Donahue, N. M.; Baltensperger, U., The role of low-volatility organic compounds in initial particle growth in the atmosphere. *Nature* **2016**, 533 (7604), 527-546.

28. Kirkby, J.; Duplissy, J.; Sengupta, K.; Frege, C.; Gordon, H.; Williamson, C.; Heinritzi, M.; Simon, M.; Yan, C.; Almeida, J.; Trostl, J.; Nieminen, T.; Ortega, I. K.; Wagner, R.; Adamov, A.; Amorim, A.; Bernhammer, A. K.; Bianchi, F.; Breitenlechner, M.; Brilke, S.; Chen, X. M.; Craven, J.; Dias, A.; Ehrhart, S.; Flagan, R. C.; Franchin, A.; Fuchs, C.; Guida, R.; Hakala, J.; Hoyle, C. R.; Jokinen, T.; Junninen, H.; Kangasluoma, J.; Kim, J.; Krapf, M.; Kurten, A.; Laaksonen, A.; Lehtipalo, K.; Makhmutov, V.; Mathot, S.; Molteni, U.; Onnela, A.; Perakyla, O.; Piel, F.; Petaja, T.; Praplan, A. P.; Pringle, K.; Rap, A.; Richards, N. A. D.; Riipinen, I.; Rissanen, M. P.; Rondo, L.; Sarnela, N.; Schobesberger, S.; Scott, C. E.; Seinfeld, J. H.; Sipila, M.; Steiner, G.; Stozhkov, Y.; Stratmann, F.; Tome, A.; Virtanen, A.; Vogel, A. L.; Wagner, A. C.; Wagner, P. E.; Weingartner, E.; Wimmer, D.; Winkler, P. M.; Ye, P. L.; Zhang, X.; Hansel, A.; Dommen, J.; Donahue, N. M.; Worsnop, D. R.; Baltensperger, U.; Kulmala, M.; Carslaw, K. S.; Curtius, J., Ion-induced nucleation of pure biogenic particles. *Nature* **2016**, 533 (7604), 521-526.

29. Ziemba, L. D.; Dibb, J. E.; Griffin, R. J.; Huey, L. G.; Beckman, P., Observations of particle growth at a remote, Arctic site. *Atmospheric Environment* **2010**, 44 (13), 1649-1657.

30. Clarke, A. D.; Davis, D.; Kapustin, V. N.; Eisele, F.; Chen, G.; Paluch, I.; Lenschow, D.; Bandy, A. R.; Thornton, D.; Moore, K.; Mauldin, L.; Tanner, D.; Litchy, M.; Carroll, M. A.; Collins, J.; Albercook, C., Particle nucleation in the tropical boundary layer and its coupling to marine sulfur sources. *Science* **1998**, 282 (5386), 89-92.

31. Burkart, J.; Hodshire, A. L.; Mungall, E. L.; Pierce, J. R.; Collins, D. B.; Ladino, L. A.; Lee, A. K. Y.; Irish, V.; Wentzell, J. J. B.; Liggio, J.; Papakyriakou, T.; Murphy, J.; Abbatt, J., Organic Condensation and Particle Growth to CCN Sizes in the Summertime Marine Arctic Is Driven by Materials More Semivolatile Than at Continental Sites. *Geophysical Research Letters* **2017**, 44 (20), 10725-10734.

32. Mungall, E. L.; Abbatt, J. P. D.; Wentzell, J. J. B.; Lee, A. K. Y.; Thomas, J. L.; Blais, M.; Gosselin, M.; Miller, L. A.; Papakyriakou, T.; Willis, M. D.; Liggio, J., Microlayer source of oxygenated volatile organic compounds in the summertime marine Arctic boundary layer.

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America **2017**, 114 (24), 6203-6208.

33. Christian, K. E.; Brune, W. H.; Mao, J. Q., Global sensitivity analysis of the GEOS-Chem chemical transport model: ozone and hydrogen oxides during ARCTAS (2008). *Atmospheric Chemistry and Physics* **2017**, 17 (5), 3769-3784.

34. Bey, I.; Jacob, D. J.; Yantosca, R. M.; Logan, J. A.; Field, B. D.; Fiore, A. M.; Li, Q. B.; Liu, H. G. Y.; Mickley, L. J.; Schultz, M. G., Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: Model description and evaluation. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* **2001**, 106 (D19), 23073-23095.

35. Wild, O.; Prather, M. J., Global tropospheric ozone modeling: Quantifying errors due to grid resolution. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* **2006**, 111 (D11), D11305.

36. Korhonen, H.; Carslaw, K. S.; Spracklen, D. V.; Ridley, D. A.; Strom, J., A global model study of processes controlling aerosol size distributions in the Arctic spring and summer. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* **2008**, 113 (D8), D08211.

37. Fogal, P. F.; LeBlanc, L. M.; Drummond, J. R., The Polar Environment Atmospheric Research Laboratory (PEARL): Sounding the Atmosphere at 80 degrees North. *Arctic* **2013**, 66 (3), 377-386.

38. Kuhn, T.; Damoah, R.; Bacak, A.; Sloan, J. J., Characterising aerosol transport into the Canadian High Arctic using aerosol mass spectrometry and Lagrangian modelling. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2010**, 10 (21), 10489-10502.

39. von der Weiden, S. L.; Drewnick, F.; Borrmann, S., Particle Loss Calculator - a new software tool for the assessment of the performance of aerosol inlet systems. *Atmospheric Measurement Techniques* **2009**, 2 (2), 479-494.

40. Canagaratna, M. R.; Jayne, J. T.; Jimenez, J. L.; Allan, J. D.; Alfarra, M. R.; Zhang, Q.; Onasch, T. B.; Drewnick, F.; Coe, H.; Middlebrook, A.; Delia, A.; Williams, L. R.; Trimborn, A. M.; Northway, M. J.; DeCarlo, P. F.; Kolb, C. E.; Davidovits, P.; Worsnop, D. R., Chemical and microphysical characterization of ambient aerosols with the aerodyne aerosol mass spectrometer. *Mass Spectrometry Reviews* **2007**, 26 (2), 185-222.

41. Middlebrook, A. M.; Bahreini, R.; Jimenez, J. L.; Canagaratna, M. R., Evaluation of Composition-Dependent Collection Efficiencies for the Aerodyne Aerosol Mass Spectrometer using Field Data. *Aerosol Science and Technology* **2012**, 46 (3), 258-271.

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

42. Stohl, A.; Forster, C.; Frank, A.; Seibert, P.; Wotawa, G., Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2005**, *5*, 2461-2474.
43. Saha, S.; Moorthi, S.; Wu, X.; Wang, J.; Nadiga, S.; Tripp, P.; Behringer, D.; Hou, Y.-T.; Chuang, H.-y.; Iredell, M.; Ek, M.; Meng, J.; Yang, R.; Mendez, M. P.; Dool, H. v. d.; Zhang, Q.; Wang, W.; Chen, M.; Becker, E., The NCEP Climate Forecast System Version 2. *Journal of Climate* **2014**, *27*, 2185-2208.
44. Collins, D. B.; Burkart, J.; Chang, R. Y. W.; Lizotte, M.; Boivin-Rioux, A.; Blais, M.; Mungall, E. L.; Boyer, M.; Irish, V. E.; Massé, G.; Kunkel, D.; Tremblay, J. É.; Papakyriakou, T.; Bertram, A. K.; Bozem, H.; Gosselin, M.; Levasseur, M.; Abbatt, J. P. D., Frequent Ultrafine Particle Formation and growth in the Canadian Arctic marine and coastal environment. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2017**, *17* (21), 13119-13138.
45. Leck, C.; Bigg, E. K., Biogenic particles in the surface microlayer and overlaying atmosphere in the central Arctic Ocean during summer. *Tellus Series B-Chemical and Physical Meteorology* **2005**, *57* (4), 305-316.
46. Jeong, C. H.; Evans, G. J.; McGuire, M. L.; Chang, R. Y. W.; Abbatt, J. P. D.; Zeromskiene, K.; Mozurkewich, M.; Li, S. M.; Leitch, A. R., Particle formation and growth at five rural and urban sites. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2010**, *10* (16), 7979-7995.
47. Crippa, P.; Pryor, S. C., Spatial and temporal scales of new particle formation events in eastern North America. *Atmospheric Environment* **2013**, *75*, 257-264.
48. Freud, E.; Krejci, R.; Tunved, P.; Leitch, R.; Nguyen, Q. T.; Massling, A.; Skov, H.; Barrie, L., Pan-Arctic aerosol number size distributions: seasonality and transport patterns. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2017**, *17* (13), 8101-8128.
49. Persson, P. O. G.; Stone, R., Evidence of forcing of Arctic regional climates by mesoscale processes. In *AMS Symposium on Connections between Mesoscale Processes and Climate Variability*, San Antonio, 2007.
50. Salma, I.; Borsos, T.; Weidinger, T.; Aalto, P.; Hussein, T.; Dal Maso, M.; Kulmala, M., Production, growth and properties of ultrafine atmospheric aerosol particles in an urban environment. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2011**, *11* (3), 1339-1353.
51. Hussein, T.; Dal Maso, M.; Petaja, T.; Koponen, I. K.; Paatero, P.; Aalto, P. P.; Hameri, K.; Kulmala, M., Evaluation of an automatic algorithm for fitting the particle number size distributions. *Boreal Environment Research* **2005**, *10* (5), 337-355.

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

52. Kulmala, M.; Vehkamäki, H.; Petaja, T.; Dal Maso, M.; Lauri, A.; Kerminen, V. M.; Birmili, W.; McMurry, P. H., Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: a review of observations. *Journal of Aerosol Science* **2004**, *35* (2), 143-176.
53. Nieminen, T.; Kerminen, V. M.; Petäjä, T.; Aalto, P. P.; Arshinov, M.; Asmi, E.; Baltensperger, U.; Beddows, D. C. S.; Beukes, J. P.; Collins, D.; Ding, A.; Harrison, R. M.; Henzing, B.; Hooda, R.; Hu, M.; Hörrak, U.; Kivekäs, N.; Komsaare, K.; Krejci, R.; Kristensson, A.; Laakso, L.; Laaksonen, A.; Leaitch, W. R.; Lihavainen, H.; Mihalopoulos, N.; Németh, Z.; Nie, W.; O'Dowd, C.; Salma, I.; Sellegri, K.; Svenningsson, B.; Swietlicki, E.; Tunved, P.; Ulevicius, V.; Vakkari, V.; Vana, M.; Wiedensohler, A.; Wu, Z.; Virtanen, A.; Kulmala, M., Global analysis of continental boundary layer new particle formation based on long-term measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussion* **2018**, *2018*, 1-34.
54. Leaitch, W. R.; Russell, L. M.; Liu, J.; Kolonjari, F.; Toom, D.; Huang, L.; Sharma, S.; Chivulescu, A.; Veber, D.; Zhang, W., Organic Functional Groups in the Submicron Aerosol at 82.5° N from 2012 to 2014. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2018**, *18*, 3269-3287.
55. Park, K. T.; Jang, S.; Lee, K.; Yoon, Y. J.; Kim, M. S.; Park, K.; Cho, H. J.; Kang, J. H.; Udisti, R.; Lee, B. Y.; Shin, K. H., Observational evidence for the formation of DMS-derived aerosols during Arctic phytoplankton blooms. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2017**, *17* (15), 9665-9675.
56. Phinney, L.; Leaitch, W. R.; Lohmann, U.; Boudries, H.; Worsnop, D. R.; Jayne, J. T.; Toom-Saunty, D.; Wadleigh, M.; Sharma, S.; Shantz, N., Characterization of the aerosol over the sub-arctic north east Pacific Ocean. *Deep-Sea Research Part II - Topical Studies in Oceanography* **2006**, *53* (20-22), 2410-2433.
57. Lambe, A. T.; Onasch, T. B.; Massoli, P.; Croasdale, D. R.; Wright, J. P.; Ahern, A. T.; Williams, L. R.; Worsnop, D. R.; Brune, W. H.; Davidovits, P., Laboratory studies of the chemical composition and cloud condensation nuclei (CCN) activity of secondary organic aerosol (SOA) and oxidized primary organic aerosol (OPOA). *Atmospheric Chemistry and Physics* **2011**, *11* (17), 8913-8928.
58. Ng, N. L.; Canagaratna, M. R.; Jimenez, J. L.; Chhabra, P. S.; Seinfeld, J. H.; Worsnop, D. R., Changes in organic aerosol composition with aging inferred from aerosol mass spectra. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2011**, *11* (13), 6465-6474.
59. Chiu, R.; Tinel, L.; Gonzalez, L.; Ciuraru, R.; Bernard, F.; George, C.; Volkamer, R., UV photochemistry of carboxylic acids at the air-sea boundary: A relevant source of glyoxal and other oxygenated VOC in the marine atmosphere. *Geophysical Research Letters* **2017**, *44* (2), 1079-1087.

Chapitre 2 : Characterization of aerosol growth events on Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016

60. Brüggemann, M.; Hayeck, N.; Bonnineau, C.; Pesce, S.; Alpert, P. A.; Perrier, S.; Zuth, C.; Hoffmann, T.; Chen, J. M.; George, C., Interfacial photochemistry of biogenic surfactants: a major source of abiotic volatile organic compounds. *Faraday Discussions* **2017**, *200*, 59-74.
61. Sharma, S.; Chan, E.; Ishizawa, M.; Toom-Sauntry, D.; Gong, S. L.; Li, S. M.; Tarasick, D. W.; Leaitch, W. R.; Norman, A.; Quinn, P. K.; Bates, T. S.; Levasseur, M.; Barrie, L. A.; Maenhaut, W., Influence of transport and ocean ice extent on biogenic aerosol sulfur in the Arctic atmosphere. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* **2012**, *117*, D12209.
62. Heintzenberg, J.; Leck, C.; Tunved, P., Potential source regions and processes of aerosol in the summer Arctic. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2015**, *15* (11), 6487-6502.
63. Dall'Osto, M.; Beddows, D. C. S.; Tunved, P.; Krejci, R.; Strom, J.; Hansson, H. C.; Yoon, Y. J.; Park, K. T.; Becagli, S.; Udisti, R.; Onasch, T.; O'Dowd, C. D.; Simo, R.; Harrison, R. M., Arctic sea ice melt leads to atmospheric new particle formation. *Scientific Reports* **2017**, *7*.
64. Giamarelou, M.; Eleftheriadis, K.; Nyeki, S.; Tunved, P.; Torseth, K.; Biskos, G., Indirect evidence of the composition of nucleation mode atmospheric particles in the high Arctic. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* **2016**, *121* (2), 965-975.

**Chapitre 3 - Développement
d'une méthode de
calibration et utilisation de
PAX en Arctique**

3.1. Développement de la méthode de calibration

Le PAX est un instrument mis en marché par la compagnie *Droplet Measurement Technologie* (DMT) en 2014. De la sorte, les techniques de calibration de cet instrument ne sont pas encore très développées et analysées dans le monde scientifique. Ainsi, dans le groupe de recherche de Patrick Hayes, une méthode de calibration complète a commencé à être développée par Philippe El-Akl et Adriana Torres et terminée par Lorena Torres et moi-même, après une année de travail avec les PAX à Montréal et Sherbrooke, Québec, Canada. Cependant, il est à noter que la méthode développée est basée sur le manuel d'opération du PAX.¹

De ce fait, un manuel de calibration complet a été créé et est démontré dans l'annexe de ce mémoire. Ce manuel comporte les rudiments de base de l'utilisation d'un PAX, l'utilisation du logiciel connecté au PAX (programme PMC), les entretiens à faire sur certaines composantes du PAX et les vérifications et calibrations du PAX.

3.2. Utilisation de PAX en Arctique

Comme présenté dans la Section 1.2.5, et plus précisément dans l'une de ces utilisations en Arctique, soit la détermination de la concentration de carbone noir dans la Section 1.2.5.1, l'utilisation du PAX est un instrument encore nouveau dans le domaine des recherches en Arctique. En effet, les instruments normalement utilisés sont du type de l'Aethalomètre² (présenté dans la Section 1.2.5.1) ou bien d'un instrument comme le « *Single Particle Soot Photometer* » (SP2)³⁻⁵.

Deux PAX, muni respectivement d'un laser à 405 nm (PAX 405 nm) et d'un laser à 870 nm (PAX 870 nm), permettent d'obtenir des résultats sur les deux longueurs d'ondes différentes, soit aux extrémités du spectre visible. Ensuite, grâce aux mesures obtenues sur l'absorption et la diffusion de la lumière, des calculs sont effectués afin d'obtenir en plus des résultats sur l'extinction, le SSA, puis sur la concentration en carbone noir. De par ces utilités, dans cette section de chapitre, il sera discuté du processus et de l'installation des PAX dans la station PEARL à Eureka, Nunavut et des résultats obtenus depuis leur installation.

3.2.1. Installation des PAX à Eureka

L'installation d'un instrument dans un nouveau site de recherche demande de bien vérifier tous les paramètres afin de s'assurer du bon fonctionnement de celui-ci. En effet, le PAX est un instrument composé d'un microphone extrêmement sensible aux bruits et aux vibrations, ce qui implique qu'il doit être placé à un endroit afin d'éviter toutes interférences acoustiques. De plus, lorsqu'on utilise un instrument mesurant des aérosols atmosphériques, ceux-ci doivent être raccordés à l'air extérieur le plus directement possible. En effet, plus le raccord entre l'extérieur et l'instrument est long, plus il y a de surface de contact (à l'intérieur des tubes utilisés), ce qui engendre une plus grande probabilité que les aérosols ne se rendent pas jusqu'à l'instrument et que ceux-ci restent accrochés aux parois internes des tubes utilisés. De la sorte, il faut faire attention à l'emplacement de l'instrumentation, en plus de faire attention à l'environnement où il se retrouvera. Ainsi, dans la station PEARL, une des plus grandes contraintes est l'espace disponible afin d'accueillir les deux PAX à l'intérieur de la même salle où se trouvait déjà un AMS, OPC et SMPS. De ce fait, après avoir fait plusieurs tests, dont plusieurs vérifications à effectuer environ tous les 6 mois sur l'instrument, un emplacement a été choisi pour chacun des deux PAX. Donc, afin d'avoir un aperçu rapide de l'emplacement des PAX par rapport au tube principal en acier inoxydable, sachant que ce tube passe au travers du toit de la station et qu'il dépasse de ce toit d'environ 2 m au-dessus, pour ensuite continuer jusqu'à la jonction en forme de « T », avec environ 5 m entre cette jonction et le toit. À cette jonction, les deux PAX sont raccordés avec un tube en cuivre d'environ 1 m chacun, d'un côté et de l'autre de cette jonction. Toutefois, vu la position finale des deux PAX, le tube de cuivre qui est raccordé avec le PAX 405 nm, fait une légère courbe vers le haut, contrairement au PAX 870 nm, que le tube de cuivre fait une demi-lune afin d'atteindre l'entrée d'air du PAX 870 nm, car le PAX 870 nm est placé directement en dessous de cette jonction en « T » (Figure 1-12). Cependant, il faut faire attention aux sortes de tubes utilisés lorsqu'on travaille avec des instruments qui analysent l'air, car il faut utiliser des tubes conducteurs afin d'éviter la perte de particules sur les parois de ceux-ci. En plus, il faut faire attention lorsqu'on effectue un montage, car plus il y a d'angles dans les tubes utilisés, plus il y a de risque de pertes de particules.

Chapitre 3 : Développement d'une méthode de calibration et utilisation de PAX en Arctique

Par la suite, il est important de noter que pour tout appareil de terrain, il faut effectuer plusieurs tests, vérifications et calibrations régulièrement afin d'assurer une bonne qualité des mesures récoltées tout au long d'une campagne. En ce qui a trait au PAX, celui-ci requiert une vérification de tous ses paramètres à tous les 6 mois, lors d'une utilisation continue et d'une vérification avant transport et après installation dans son nouvel environnement. Ainsi, en suivant le manuel de calibration créé au cours de cette recherche (présenté en annexe), il suffit premièrement de vérifier la puissance laser, le bruit acoustique et le débit de la pompe au minimum aux 6 mois, mais le plus fréquemment possible est le mieux afin de déceler tout problème relié au mal fonctionnement d'une composante de l'instrument. Ensuite, une fois ces vérifications effectuées et optimisées au possible, il ne reste plus qu'à effectuer la calibration de l'absorbance et de la diffusion de l'instrument. Toutefois, il est à noter que la technique de calibration de l'absorbance est encore à retravailler afin d'effectuer une calibration plus rapide et peut-être aussi effectuer une calibration se rapprochant plus de celle effectuée sur les autres instruments utilisés dans le cadre de cette recherche.

3.2.2. Résultats et discussion

Lors de cette recherche, une analyse préliminaire des données, provenant des deux PAX à Eureka, a pu être effectuée pour les particules ayant passé à Eureka entre le 6 août 2016 (date de mise en fonction des deux PAX à Eureka) et le 2 mai 2017, ce qui correspond principalement à la période hivernale en Arctique. Cependant, avant de regarder les résultats obtenus, il est important de se rappeler, comme discuté dans la Section 1.2.5, que les différents paramètres principaux sont le coefficient d'absorption de la lumière (B_{abs}), le coefficient de diffusion de la lumière (B_{scat}), le SSA et le carbone noir. Il est à noter que les coefficients d'absorption et de diffusion utilisent les unités Mm^{-1} , correspondant à 1/mégamètre ou bien $1/10^6$ m.

Pour commencer, une observation globale de toutes les données obtenues par les PAX pour le B_{scat} , B_{abs} et le carbone noir a été effectuée et présentée à la Figure 3-1. Cette analyse permet de constater une similarité dans l'apparition de différents pics d'évènements se produisant à Eureka, au niveau des matières particulaires. De plus, en regardant la concentration de particules au cours de l'hiver, il est possible de détecter une corrélation avec une

augmentation graduelle globale de la concentration des particules, surtout en regardant le B_{scat} pour les deux instruments.

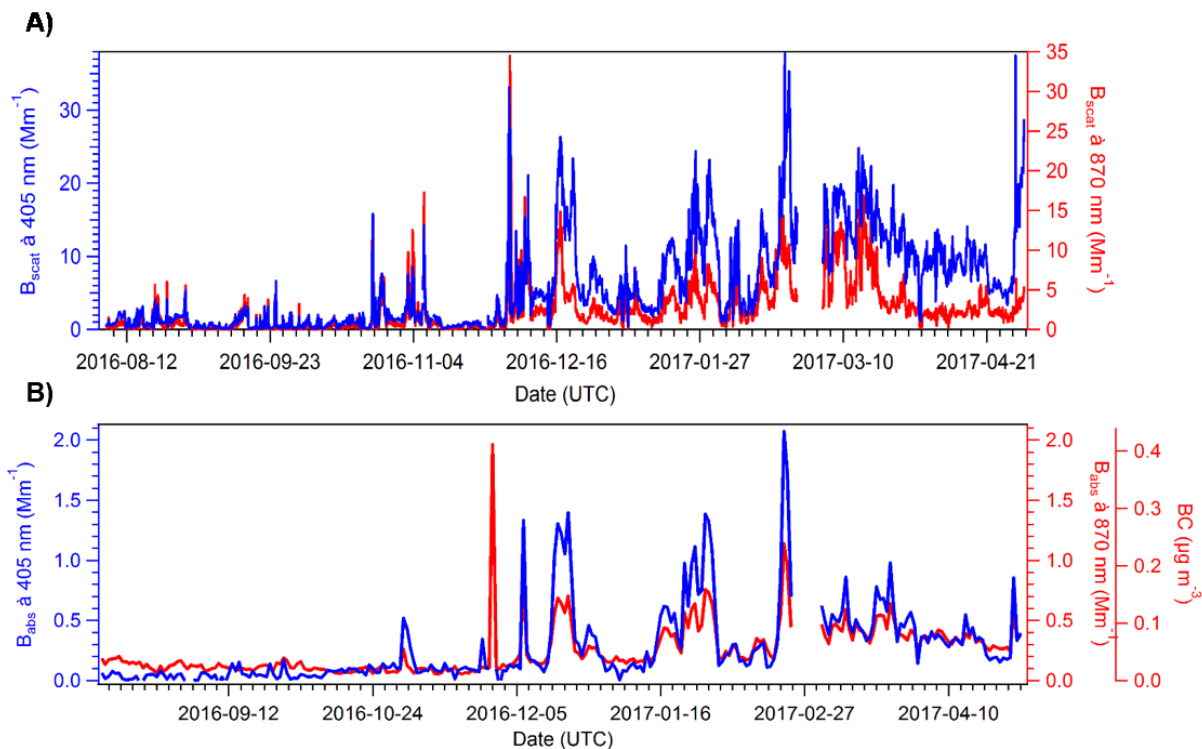


Figure 3-1 Comparaisons des mesures obtenues par le PAX 405 nm (bleu) et le PAX 870 nm (rouge) pour les données de diffusions (A) et d'absorbance (B) de la lumière.

Ainsi, ces résultats confirment l'effet qu'a le front polaire sur l'emprisonnement des particules et leur accumulation dans l'atmosphère arctique causant le phénomène de la brume arctique (ou bien en anglais de l'« *arctic haze* »). En ce qui a trait aux résultats obtenus pour le carbone noir (BC), d'où celui-ci est interrelié avec le B_{abs} comme expliqué dans la Section 1.2.5.1, ceux-ci permettent de confirmer la présence plus importante du carbone noir lors de l'hiver comparativement à l'été, en plus de pouvoir observer différents évènements de grandes concentrations de carbone noir passant par l'Arctique. De plus, cette première analyse permet de confirmer la consistance des mesures prises par les PAX.

Par la suite, afin de poursuivre l'analyse préliminaire, une analyse plus poussée sur la valeur du SSA par rapport au B_{scat} et au B_{abs} sur les deux PAX a été effectuée (Figure 3-2). En effet, cette idée d'analyse provenant des recherches faites par Moosmüller et al.⁶, permet de savoir la constance relative du SSA au travers des données obtenues par un PAX et ainsi

déterminer la relation entre le SSA et la longueur d'onde utilisée pour effectuer les mesures, dans le cas de notre recherche.

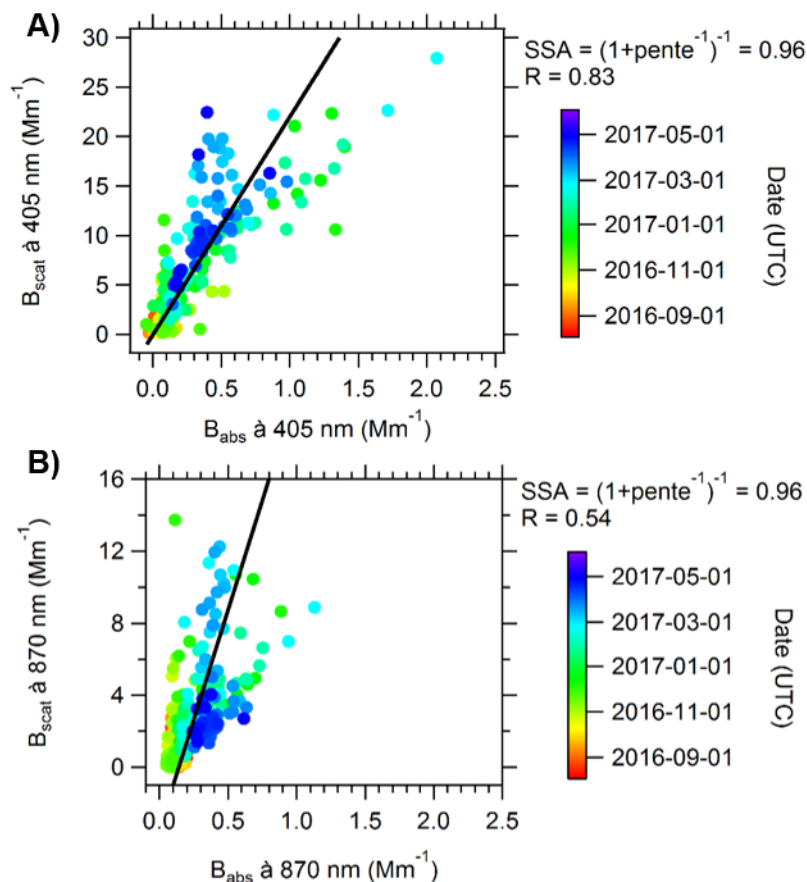


Figure 3-2 Corrélation entre les coefficients de diffusion et d'absorption mesurée par le PAX 405 nm (A) et le PAX 870 nm (B).

Ces résultats démontrent que les valeurs de SSA pour le PAX 405 nm sont relativement constantes pendant la période de mesure, avec un coefficient de corrélation de 0.83. Toutefois, une plus grande variation du SSA pour le PAX 870 nm a été observée, comme indiqué par le coefficient de corrélation de 0.54, mais peut-être dû au bruit ambiant lors de la prise des mesures. En effet, lors des tests acoustiques faits régulièrement sur les PAX, une petite différence dans le bruit de fond a été observée et cela peut être dû à la position d'où se retrouve le PAX 870 nm dans la station PEARL. Le fait d'être positionné sur le dernier étage d'une étagère industrielle n'aiderait sûrement pas à contenir correctement les vibrations occasionnées par les différentes machines et pompes environnantes, ce qui causerait un bruit de fond plus élevé et ainsi causerait

peut être une déviation minime des mesures prises par le PAX 870 nm comparativement au PAX 405 nm. Ensuite, la valeur très similaire de SSA obtenue pour chacun des PAX (soit de 0.96 pour les deux instruments) permet de dire que la valeur de SSA est relativement indépendante de la longueur d'onde.

Par la suite, afin d'évaluer les différents paramètres principaux pour chacun des PAX, ceux-ci ont été disposés par leurs percentiles (ou bien en anglais « *box and whiskers plots* ») à la Figure 3-3. Premièrement, en regardant principalement la médiane, il est possible de dire qu'en général leurs valeurs, lorsqu'on compare le PAX 405 nm et le PAX 870 nm, sont similaires et confirment les comparaisons faites et les mêmes tendances dans les résultats des prises de mesure des deux PAX démontrés dans la Figure 3-1.

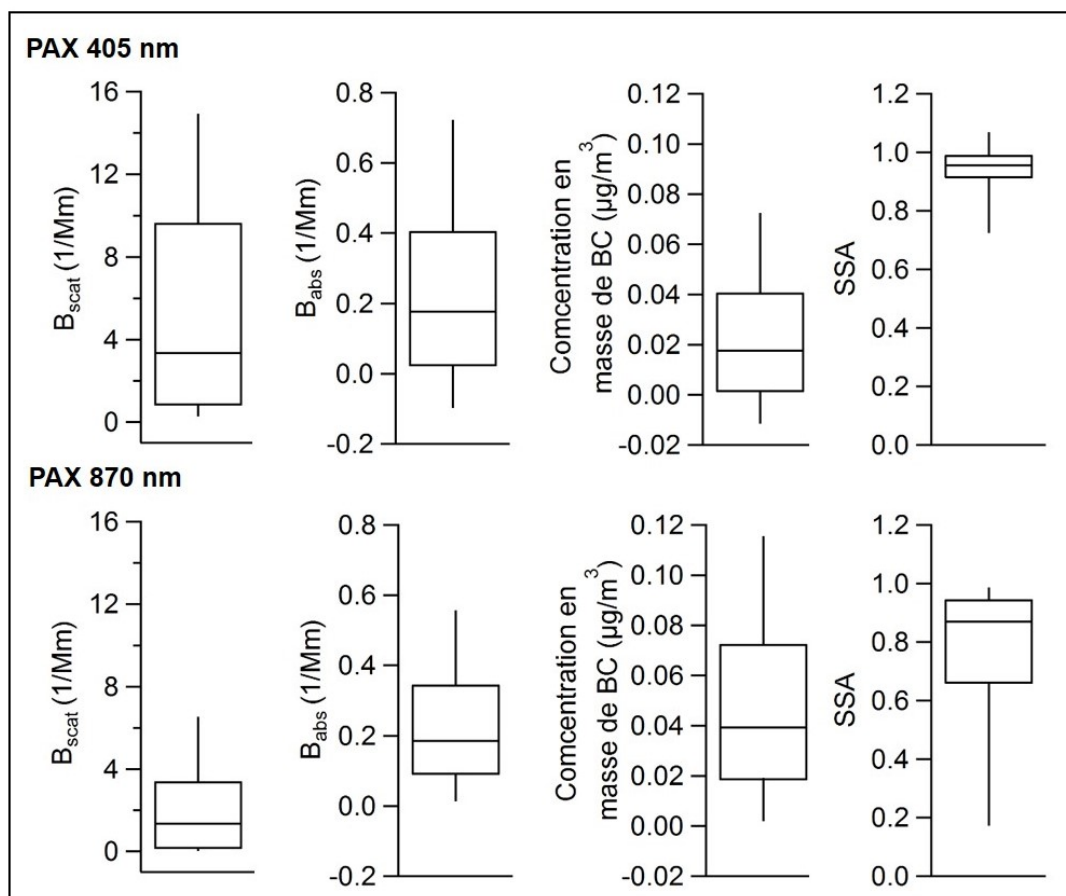


Figure 3-3 Percentiles des données principales obtenues par le PAX 405 nm et le PAX 870 nm.

Les figures indiquent les percentiles à 10, 25, 50, 75 et 90.

Chapitre 3 : Développement d'une méthode de calibration et utilisation de PAX en Arctique

De manière plus précise, le B_{scat} varie plus pour le PAX 450 nm que pour le PAX 870 nm, avec des écarts de plus de 6 Mm^{-1} pour le percentile 90 avec la médiane. Lorsqu'on regarde le B_{abs} , celui-ci suit la même tendance dans le taux de variation pour les deux PAX avec une plus grande variation dans les valeurs obtenues par le PAX 405 nm que par le PAX 870 nm. Toutefois, une tendance inverse, face à la variation des données obtenues, se produit lorsqu'on regarde la concentration en masse de carbone noir et le SSA. En effet, ce changement est encore plus évident lorsqu'on regarde le SSA, ce qui confirme le coefficient de corrélation obtenu à la Figure 3-2, d'où l'on voit une plus petite variation dans les données obtenues pour le PAX 405 nm. Ainsi, par ces données, celles-ci démontrent l'importance d'utiliser deux PAX à longueur d'ondes différentes, car cela permet d'avoir un aperçu plus global et juste à la fois, de ce qui se passe lors de l'analyse des caractéristiques optiques des PAX.

3.2.3. Conclusion

Pour conclure, grâce à cette analyse préliminaire des données obtenues par les PAX, celles-ci permettent de voir le potentiel que ces données peuvent apporter à cette recherche. En effet, grâce à ces données, la caractérisation des matières particulaires passant en Arctique peut être encore plus précise au niveau de leurs caractérisations optiques de ces aérosols. Ainsi, autant avec le B_{scat} , le B_{abs} , le carbone noir que le SSA, il est possible pour le moment d'apercevoir rapidement l'impact direct de ces particules lorsqu'ils sont dans l'atmosphère ou dans les nuages. Ensuite, grâce à cette première analyse il a été possible de relier la période hivernale et de la brume arctique avec l'augmentation de l'absorption et de la diffusion de la lumière au travers des données des PAX. Par la suite, avec les données du B_{scat} et du B_{abs} , il a été possible de déterminer la concentration en carbone noir et de quantifier le SSA à Eureka. De la sorte, pour des travaux futurs, il serait intéressant de se concentrer sur l'analyse des changements pour le SSA lors d'évènements spécifiques par rapport à la moyenne. De plus, il serait intéressant de calculer le coefficient de diffusion à partir des distributions de tailles mesurées par le SMPS et le OPC, en utilisant la théorie de Mie⁷, afin de comparer ces instruments avec les valeurs obtenues par les PAX, en plus de déterminer l'indice de réfraction des aérosols à Eureka.

3.3. Références (Chapitre 3)

1. Droplet; Measurement; Technologies; Inc., *Photoacoustic Extinctionmeter (PAX), Operator Manual*. 2014.
2. Drinovec, L.; Gregoric, A.; Zotter, P.; Wolf, R.; Bruns, E. A.; Prevot, A. S. H.; Petit, J. E.; Favez, O.; Sciare, J.; Arnold, I. J.; Chakrabarty, R. K.; Moosmuller, H.; Filep, A.; Mocnik, G., The filter-loading effect by ambient aerosols in filter absorption photometers depends on the coating of the sampled particles. *Atmospheric Measurement Techniques* **2017**, *10* (3), 1043-1059.
3. Laborde, M.; Schnaiter, M.; Linke, C.; Saathoff, H.; Naumann, K. H.; Moehler, O.; Berlenz, S.; Wagner, U.; Taylor, J. W.; Liu, D.; Flynn, M.; Allan, J. D.; Coe, H.; Heimerl, K.; Dahlkoetter, F.; Weinzierl, B.; Wollny, A. G.; Zannata, M.; Cozic, J.; Laj, P.; Hitzenberger, R.; Schwarz, J. P.; Gysel, M., Single Particle Soot Photometer intercomparison at the AIDA chamber. *Atmospheric Measurement Techniques* **2012**, *5* (12), 3077-3097.
4. Bisiaux, M. M.; Edwards, R.; Heyvaert, A. C.; Thomas, J. M.; Fitzgerald, B.; Susfalk, R. B.; Schladow, S. G.; Thaw, M., Stormwater and Fire as Sources of Black Carbon Nanoparticles to Lake Tahoe. *Environmental Science & Technology* **2011**, *45* (6), 2065-2071.
5. Wang, Q. Y.; Huang, R. J.; Cao, J. J.; Tie, X. X.; Ni, H. Y.; Zhou, Y. Q.; Han, Y. M.; Hu, T. F.; Zhu, C. S.; Feng, T.; Li, N.; Li, J. D., Black carbon aerosol in winter northeastern Qinghai-Tibetan Plateau, China: the source, mixing state and optical property. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2015**, *15* (22), 13059-13069.
6. Moosmuller, H.; Engelbrecht, J. P.; Skiba, M.; Frey, G.; Chakrabarty, R. K.; Arnott, W. P., Single scattering albedo of fine mineral dust aerosols controlled by iron concentration. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* **2012**, *117*.
7. Cazorla, A.; Bahadur, R.; Suski, K. J.; Cahill, J. F.; Chand, D.; Schmid, B.; Ramanathan, V.; Prather, K. A., Relating aerosol absorption due to soot, organic carbon, and dust to emission sources determined from in-situ chemical measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2013**, *13* (18), 9337-9350.

Chapitre 4 - Conclusion générale et perspectives

4.1. Retour sur les objectifs et les résultats du projet

En conclusion, le but du projet consistait à commencer la caractérisation des propriétés chimiques, physiques et optiques des matières particulaires atmosphériques dans le Grand Nord canadien. Pour y parvenir, une analyse de données provenant d'un OPC, d'un AMS et d'un SMPS à Eureka, en plus d'un SMPS à Alert, a été effectuée dans un premier temps. Dans un deuxième temps, une analyse préliminaire de deux PAX, muni de deux longueurs d'onde différentes (405 nm et 870 nm), nouvellement installées à Eureka durant l'été 2016, a été effectuée.

De manière plus précise, au travers du chapitre 2, l'un des premiers éléments aperçus fut de nouveaux événements de croissance et de formation de particules qui ont pu être caractérisés au cours des étés 2015 et 2016 à Eureka comme à Alert. Ces deux sites de recherches sont situés sur l'île d'Ellesmere au Nunavut, Canada et sont séparés par une distance de 500 km, ce qui a permis de commencer une évaluation d'événements de croissance à une échelle régionale pour l'ensemble de l'été 2016, ainsi que pour une partie de l'été 2015. Au cours de ces deux années, un grand nombre d'événements de croissance sont survenus, d'où ces événements ont pu être corrélés entre les deux sites. En plus de la concordance de ces événements, les concentrations de particules mesurées à Eureka et à Alert étaient similaires au niveau de leurs percentiles. Afin d'aller plus loin dans la caractérisation de ces événements, un calcul du taux de croissance a été effectuée et a démontrée pour 5 événements évalués plus en profondeur lors de cette recherche, un taux de croissance très similaire, avec un facteur de variation de 2.5. Puis, grâce aux trajectoires inverses de 5 événements, il peut être conclu que l'air pendant la nucléation des particules et les événements de croissance est influencé principalement par les émissions de l'Arctique.

De plus, en seconde partie au chapitre 2, les mesures de l'AMS ont permis de déterminer que les particules de moins de 100 nm sont principalement organiques et que le rapport organique-sulfate augmente à partir des tailles de particules plus petites. Ensuite, ces mesures ont permis de déterminer que la quantité d'oxydation de la fraction organique varie également avec la taille des particules, selon le rapport m/z 43 à m/z 44, augmentant à des tailles de particules plus grandes, ce qui serait compatible avec une plus grande fraction de acides

organiques par rapport aux autres composés oxygénés. Cependant, afin de pousser un peu plus loin l'analyse de ces résultats, les concentrations relatives des composés organiques oxygénés ont également été analysées et permettent la conclusion que l'oxydation de la masse d'aérosols organiques a une tendance à augmenter pendant des événements de croissances. Au final, les résultats obtenus avec l'AMS supportent la conclusion que la condensation des vapeurs organiques contribue à la croissance des particules lors d'événements de croissances.

Également, les recherches faites au cours de cette étude confirment l'hypothèse de plusieurs chercheurs, sur le fait que les aérosols organiques secondaires sont formés à partir des VOC émis par des sources marines¹⁻⁸, d'où celles-ci seraient une source importante de particules ultrafines dans l'Arctique pendant l'été. De manière plus précise, c'est au travers des mesures obtenues par le SMPS et l'AMS, et en comparant les événements de croissances à la hauteur de la couche d'inversion, il a été possible de confirmer que lorsqu'il y a une inversion inexistante ou faible, qu'un événement de croissances se produit au site de mesures. De plus, l'association entre le commencement des événements de croissance suit généralement la fonte et la congélation de la glace dans le Fjord à Eureka, plutôt que le lever et le coucher du soleil polaire.

En ce qui a trait au chapitre 3, l'installation des PAX à Eureka a permis d'effectuer une analyse préliminaire concluante pour son utilisation en Arctique. En effet, il a été possible de commencer la caractérisation optique des matières particulaires passant par Eureka, avec l'analyse des mesures de B_{scat} , B_{abs} , SSA et la concentration en masse de carbone noir de ces particules, afin de préciser l'impact de ces particules dans l'Atmosphère et dans les nuages. De plus, avec ces résultats, il a été permis de relier l'événement de brume arctique se produisant pendant la période hivernale et l'augmentation de la concentration de ces paramètres. Finalement, grâce à ces mesures, il a été possible de commencer une analyse de la concentration en carbone noir et de quantifier le SSA à Eureka.

4.2. Perspectives

De par ces résultats obtenus au cours de cette recherche, plusieurs perspectives peuvent être envisagées pour ce projet. En effet, effectuer une continuation dans la récolte de données à

Chapitre 4 : Conclusion générale et perspectives

Eureka, autant qu'à Alert, à l'aide du SMPS, OPC, AMS et des deux PAX, serait intéressant afin d'approfondir la caractérisation des propriétés chimiques, physiques et optiques des aérosols atmosphériques. Ainsi, cela permettrait une confirmation plus poussée des hypothèses et des observations produites au cours de cette recherche. De plus, des travaux futurs devraient se concentrer sur l'incorporation de plus de données sur la glace provenant de la mer (ou du Fjord) à Eureka, ainsi qu'incorporer des mesures en phase gazeuse pour comprendre le moment et l'origine des phénomènes de nucléation et de croissance.

Également, il serait intéressant de se concentrer sur l'analyse des changements pour le SSA lors d'événements spécifiques par rapport à la moyenne. En plus, il serait intéressant d'effectuer des calculs afin d'obtenir l'exposant d'Angstrom avec l'absorption (AAE) et la diffusion (SAE), ce qui permettrait d'effectuer une classification des aérosols analysés. Cependant, avant d'aller plus loin dans ces calculs, il serait aussi intéressant de calculer le coefficient de diffusion à partir des distributions de tailles mesurées par le SMPS et le OPC, en utilisant la théorie de Mie⁹, afin de comparer ces instruments avec les valeurs obtenues par les PAX, en plus de déterminer l'indice de réfraction des aérosols à Eureka.

Néanmoins, afin d'obtenir une vision plus large et précise de ce qui se passe dans le Grand Nord canadien, il serait intéressant à l'avenir de comparer ces résultats obtenus avec un « *sun/moon/star photometer* », disponible à Eureka, afin d'approfondir cette recherche encore plus loin. En effet, cet instrument permet d'étudier en détail les variations interannuelles et saisonnières de la profondeur optique totale des aérosols.¹⁰ Ainsi, ces mesures permettront d'effectuer un prolongement dans la caractérisation des propriétés physiques des matières particulaires atmosphériques en Arctique.

4.3. Référence

1. Willis, M. D.; Burkart, J.; Thomas, J. L.; Kollner, F.; Schneider, J.; Bozem, H.; Hoor, P. M.; Aliabadi, A. A.; Schulz, H.; Herber, A. B.; Leaitch, W. R.; Abbatt, J. P. D., Growth of nucleation mode particles in the summertime Arctic: a case study. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2016**, *16* (12), 7663-7679.
2. Fu, P. Q.; Kawamura, K.; Chen, J.; Charriere, B.; Sempere, R., Organic molecular composition of marine aerosols over the Arctic Ocean in summer: contributions of primary emission and secondary aerosol formation. *Biogeosciences* **2013**, *10* (2), 653-667.
3. Chang, R. Y. W.; Slowik, J. G.; Shantz, N. C.; Vlasenko, A.; Liggio, J.; Sjostedt, S. J.; Leaitch, W. R.; Abbatt, J. P. D., The hygroscopicity parameter (κ) of ambient organic aerosol at a field site subject to biogenic and anthropogenic influences: relationship to degree of aerosol oxidation. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2010**, *10* (11), 5047-5064.
4. Clarke, A. D.; Owens, S. R.; Zhou, J. C., An ultrafine sea-salt flux from breaking waves: Implications for cloud condensation nuclei in the remote marine atmosphere. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* **2006**, *111* (D6), D06202.
5. Hoppel, W. A.; Frick, G. M.; Larson, R. E., Effect of nonprecipitating clouds on the aerosol size distribution in the marine boundary-layer. *Geophysical Research Letters* **1986**, *13* (2), 125-128.
6. Clarke, A. D.; Davis, D.; Kapustin, V. N.; Eisele, F.; Chen, G.; Paluch, I.; Lenschow, D.; Bandy, A. R.; Thornton, D.; Moore, K.; Mauldin, L.; Tanner, D.; Litchy, M.; Carroll, M. A.; Collins, J.; Albercook, C., Particle nucleation in the tropical boundary layer and its coupling to marine sulfur sources. *Science* **1998**, *282* (5386), 89-92.
7. Burkart, J.; Hodshire, A. L.; Mungall, E. L.; Pierce, J., R.; Collins, D. B.; Ladino, L. A.; Lee, A. K. Y.; Irish, V.; Wentzell, J. J. B.; Liggio, J.; Papakyriakou, T.; Murphy, J.; Abbatt, J., Organic Condensation and Particle Growth to CCN Sizes in the Summertime Marine Arctic Is Driven by Materials More Semivolatile Than at Continental Sites. *Geophysical Research Letters* **2017**, *44* (20), 10725-10734.
8. Collins, D. B.; Burkart, J.; Chang, R. Y. W.; Lizotte, M.; Boivin-Rioux, A.; Blais, M.; Mungall, E. L.; Boyer, M.; Irish, V. E.; Massé, G.; Kunkel, D.; Tremblay, J. É.; Papakyriakou, T.; Bertram, A. K.; Bozem, H.; Gosselin, M.; Lévassieur, M.; Abbatt, J. P. D., Frequent Ultrafine Particle Formation and growth in the Canadian Arctic marine and coastal environment. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2017**, *17* (21), 13119-13138.
9. Cazorla, A.; Bahadur, R.; Suski, K. J.; Cahill, J. F.; Chand, D.; Schmid, B.; Ramanathan, V.; Prather, K. A., Relating aerosol absorption due to soot, organic carbon, and dust to emission

sources determined from in-situ chemical measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics* **2013**, *13* (18), 9337-9350.

10. Herber, A.; Thomason, L. W.; Gernandt, H.; Leiterer, U.; Nagel, D.; Schulz, K. H.; Kaptur, J.; Albrecht, T.; Notholt, J., Continuous day and night aerosol optical depth observations in the Arctic between 1991 and 1999. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* **2002**, *107* (D10).

Annexe

Section A – Rapide aperçu de l’analyse des résultats pour le SMPS, l’OPC et le PAX

Dans cette section, un aperçu rapide du fonctionnement du traitement des données sera démontré pour les instruments pour lesquels j’ai effectué le traitement des données. Toutefois, seulement les fonctions et procédures créées lors de ce projet seront illustrées en détail.

I. Analyse des résultats pour le SMPS

1. Ouvrir une nouvelle session Igor.
2. Ouvrir les procédures « Global_Utils 04-13.ipf » et « MCMA2006_SMPS.ipf » et ensuite faire « compile ».
 - 2.1. Ceci va créer un nouvel onglet de commande appelé « TSI » dans Igor.
3. Peser sur « TSI » et choisir l’onglet « Load and Process SMPS data ».
 - 3.1. Cela va ouvrir une fenêtre allant directement dans les dossiers de l’ordinateur.
 - 3.1.1. Il suffit d’avoir au préalable toutes les données du SMPS devant être analysées dans un dossier à part dans l’ordinateur, afin de le sélectionner pour le téléchargement des données dans la session Igor.
4. Une fois toutes les données téléchargées correctement, il faut effectuer le contrôle qualité (QC) de ces données.
 - 4.1. Téléchargez la procédure « SMPS_QC.ipf » et faites « compile ».
 - 4.1.1. Fonction « SMPS_QC.ipf » qui a été créée dans le cadre de cette recherche :

```

Function SMPS_QC_all ()
Wave Flagwv_SMPS
Wave smps_Nmatrix
Wave smps_Vmatrix
Wave smps_integrated_N
Wave smps_integrated_V

```

```

SMPS_QC1 (smps_Nmatrix, Flagwv_SMPS)
SMPS_QC2 (smps_Vmatrix, Flagwv_SMPS)
SMPS_QC3 (smps_integrated_N, Flagwv_SMPS)
SMPS_QC4 (smps_integrated_V, Flagwv_SMPS)

```

```
End
```

```
Function SMPS_QC1 (smps_Nmatrix, Flagwv_SMPS)
```

```

Wave Flagwv_SMPS
Wave smps_Nmatrix
duplicate/o smps_Nmatrix, MX_QC_smps_Nmatrix

```

```

Variable index
variable qdex
index=0
qdex=0
For (index=0; index<dimsize(MX_QC_smps_Nmatrix,0); index+=1)
  if (Flagwv_SMPS[index] == 2)
    For (qdex=0; qdex<dimsize(MX_QC_smps_Nmatrix,1); qdex+=1)
      MX_QC_smps_Nmatrix[index][qdex] = NaN
    Endfor
  Endif
Endfor

```

```
Endfor
```

```
End
```

```
Function SMPS_QC2 (smps_Vmatrix, Flagwv_SMPS)
```

```

Wave Flagwv_SMPS
Wave smps_Vmatrix
duplicate/o smps_Vmatrix, MX_QC_smps_Vmatrix

```

```

Variable index
variable qdex
index=0
qdex=0
For (index=0; index<dimsize(MX_QC_smps_Vmatrix,0); index+=1)
  if (Flagwv_SMPS[index] == 2)
    For (qdex=0; qdex<dimsize(MX_QC_smps_Vmatrix,1); qdex+=1)
      MX_QC_smps_Vmatrix[index][qdex] = NaN
    Endfor
  Endif
Endfor

```

```
Endfor
```

```
End
```

```
Function SMPS_QC3 (smps_integrated_N, Flagwv_SMPS)
```

```

Wave Flagwv_SMPS
Wave smps_integrated_N
duplicate/o smps_integrated_N, MX_QC_smps_integrated_N

```

```

Variable index
index=0
For (index=0; index<dimsize(MX_QC_smps_integrated_N, 0); index+=1)
  if (Flagwv_SMPS[index] == 2)
    MX_QC_smps_integrated_N[index][p] = NaN
  Endif
Endfor

```

```
Endfor
```

```
End
```

```
Function SMPS_QC4 (smps_integrated_V, Flagwv_SMPS)
```

```

Wave Flagwv_SMPS
Wave smps_integrated_V
duplicate/o smps_integrated_V, MX_QC_smps_integrated_V

```

```

Variable index
index=0
For (index=0; index<dimsize(MX_QC_smps_integrated_V, 0); index+=1)
  if (Flagwv_SMPS[index] == 2)
    MX_QC_smps_integrated_V[index][p] = NaN
  Endif
Endfor

```

```
Endfor
```

```
End
```

4.2. Copier et coller la « wave » appelée « Flagwv_SMPS » du plus récent document de traitement des données du SMPS.

4.3. Disposer côte à côte les « wave » : « smps_date_time » et « Flagwv_SMPS » et égaliser ces deux « wave » afin qu'elles soient de même longueur.

4.4. Changer dans « Flagwv_SMPS » les zéros en chiffre 2, lorsqu'il faut retirer une donnée.

4.4.1. Lorsqu'on efface une donnée, celle-ci correspond soit à une donnée erronée ou bien lorsque le système a été ouvert.

4.5. Faire procéder la fonction « SMPS_QC_all () ».

4.5.1. Une fois cette fonction procéder, plusieurs « wave » seront doublés, mais avec le suffixe « MX_QC » devant, ce qui indique que le contrôle qualité a été effectué sur ces données.

5. Pour comparer les données du SMPS avec d'autres instruments, il faut les mettre en heure, soit effectuer le « regrid ».

5.1. Pour préparer les données au « regrid », il faut créer deux nouvelles « wave » de temps afin d'avoir un temps de départ et un temps de fin arrangés selon le « regrid » que l'on veut effectuer.

5.1.1. Ouvrir et utiliser la fonction « SMPS_Time_for_Regrid.ipf » et changer en conséquence de la longueur de la « wave » de temps voulu et selon le temps de référence.

5.1.1.1. Fonction « SMPS_Time_for_Regrid.ipf » qui a été créé dans le cadre de cette recherche :

```
Function SMPS_Time_for_Regrid (smps_date_time)
```

```
wave smps_date_time
```

```
// Modifier les chiffres dans les parenthèses selon la longueur voulue
```

```
make/o/d/n = (17084) smps_datetime_start
```

```
make/o/d/n = (17083) smps_datetime_end
```

```
// Modifier la cellule utiliser dans les [ ] et ensuite ajuster l'heure selon l'heure indiquer dans la cellule choisie pour remettre le tout à une heure juste
```

```
smps_datetime_start = smps_date_time [0] + (x*60*60) - (41*60) - 39
```

```
smps_datetime_end = smps_date_time [0] + (x*60*60) + (60*60) - (41*60) - 39
```

```
End
```

5.1.2. Appliquer la fonction afin de créer les « wave » : « smps_datetime_start » et « smps_datetime_end » voulu.

5.2. Ouvrir la procédure « Regrid_wavematrix-progress_bar_for_matrix ».

5.3. Utiliser selon le type de données utilisé, soit la fonction pour les matrices ou bien pour les cellules pour une « wave » simple afin d'effectuer le changement des données selon l'heure voulue.

5.3.1. Ne surtout pas oublier de changer le nom de toutes nouvelles « wave » créées avec cette fonction.

II. Analyse des résultats pour le OPC

1. Ouvrir une nouvelle session Igor.
2. Ouvrir la procédure « OPC_PEARL.ipf » et faire « compile ».
 - 2.1. Utiliser la fonction « load_opc_date () ».
 - 2.2. Cela va ouvrir une fenêtre allant directement dans les dossiers de l'ordinateur.
 - 2.2.1. Il suffit d'avoir au préalable toutes les données du OPC devant être analysées dans un dossier à part dans l'ordinateur, afin de le sélectionner pour le téléchargement des données dans la session Igor.
3. Une fois toutes les données téléchargées correctement, il faut modifier légèrement les données afin de les mettre à la bonne unité de mesure.
 - 3.1. Effacer les données entre 0 et 7096 pour toutes les « wave » téléchargées, car ces données se répètent et malheureusement ne peut être enlevées des données brutes avant téléchargement.
 - 3.2. Diviser toutes les données brutes (à l'exception du temps) par 1000.
 - 3.2.1. Ne pas oublier de créer des nouvelles « wave » avec leurs noms respectifs selon leurs longueurs d'onde (ex. changer « dn1 » par « OPC_300nm_500nm ») et changer la « wave » « dt » par « OPC_DateTime ».
4. Effectuer le contrôle qualité (QC) de ces données.
 - 4.1. Téléchargez la procédure « OPC_QC.ipf » et faites « compile ».
 - 4.1.1. Fonction « OPC_QC.ipf » qui a été créée dans le cadre de cette recherche :

```

Function OPC_QC_all()
Wave Flagw_OPc
Wave OPC_300nm_500nm
Wave OPC_all_matrix
Wave OPC_n_all
Wave OPC_500nm_1000nm
Wave OPC_1000nm_2000nm
Wave OPC_2000nm_5000nm
Wave OPC_5000nm_10000nm
Wave OPC_10000nm

OPC_QC1(OPC_300nm_500nm, Flagw_OPc)
OPC_QC2(OPC_all_matrix, Flagw_OPc)
OPC_QC3(OPC_n_all, Flagw_OPc)
OPC_QC4(OPC_500nm_1000nm, Flagw_OPc)
OPC_QC5(OPC_1000nm_2000nm, Flagw_OPc)
OPC_QC6(OPC_2000nm_5000nm, Flagw_OPc)
OPC_QC7(OPC_5000nm_10000nm, Flagw_OPc)
OPC_QC8(OPC_10000nm, Flagw_OPc)

End

Function OPC_QC1(OPC_300nm_500nm, Flagw_OPc)

Wave Flagw_OPc
Wave OPC_300nm_500nm
duplicate/o OPC_300nm_500nm, MX_QC_OPc_300nm_500nm

Variable index
index=0
For (index=0; index<dimsize(MX_QC_OPc_300nm_500nm, 0); index+=1)
  if (Flagw_OPc[index]==2)
    MX_QC_OPc_300nm_500nm[index][p]=NaN
  Endif
Endfor
End

Function OPC_QC2(OPC_all_matrix, Flagw_OPc)

Wave Flagw_OPc
Wave OPC_all_matrix
duplicate/o OPC_all_matrix, MX_QC_OPc_all_matrix

Variable index
Variable qdex
index=0
qdex=0
For (index=0; index<dimsize(MX_QC_OPc_all_matrix, 0); index+=1)
  if (Flagw_OPc[index]==2)
    For (qdex=0; qdex<dimsize(MX_QC_OPc_all_matrix, 1); qdex+=1)
      MX_QC_OPc_all_matrix [index][qdex]=NaN
    Endfor
  Endif
Endfor
End

Function OPC_QC3(OPC_n_all, Flagw_OPc)

Wave Flagw_OPc
Wave OPC_n_all
duplicate/o OPC_n_all, MX_QC_OPc_n_all

Variable index
index=0
For (index=0; index<dimsize(MX_QC_OPc_n_all, 0); index+=1)
  if (Flagw_OPc[index]==2)
    MX_QC_OPc_n_all[index][p]=NaN
  Endif
Endfor
End

```

```

Function OPC_QC4(OPC_500nm_1000nm, Flagw_OPc)

Wave Flagw_OPc
Wave OPC_500nm_1000nm
duplicate/o OPC_500nm_1000nm, MX_QC_OPc_500nm_1000nm

Variable index
index=0
For (index=0; index<dimsize(MX_QC_OPc_500nm_1000nm, 0); index+=1)
  if (Flagw_OPc[index]==2)
    MX_QC_OPc_500nm_1000nm[index][p]=NaN
  Endif
Endfor
End

Function OPC_QC5(OPC_1000nm_2000nm, Flagw_OPc)

Wave Flagw_OPc
Wave OPC_1000nm_2000nm
duplicate/o OPC_1000nm_2000nm, MX_QC_OPc_1000nm_2000nm

Variable index
index=0
For (index=0; index<dimsize(MX_QC_OPc_1000nm_2000nm, 0); index+=1)
  if (Flagw_OPc[index]==2)
    MX_QC_OPc_1000nm_2000nm[index][p]=NaN
  Endif
Endfor
End

Function OPC_QC6(OPC_2000nm_5000nm, Flagw_OPc)

Wave Flagw_OPc
Wave OPC_2000nm_5000nm
duplicate/o OPC_2000nm_5000nm, MX_QC_OPc_2000nm_5000nm

Variable index
index=0
For (index=0; index<dimsize(MX_QC_OPc_2000nm_5000nm, 0); index+=1)
  if (Flagw_OPc[index]==2)
    MX_QC_OPc_2000nm_5000nm[index][p]=NaN
  Endif
Endfor
End

Function OPC_QC7(OPC_5000nm_10000nm, Flagw_OPc)

Wave Flagw_OPc
Wave OPC_5000nm_10000nm
duplicate/o OPC_5000nm_10000nm, MX_QC_OPc_5000nm_10000nm

Variable index
index=0
For (index=0; index<dimsize(MX_QC_OPc_5000nm_10000nm, 0); index+=1)
  if (Flagw_OPc[index]==2)
    MX_QC_OPc_5000nm_10000nm[index][p]=NaN
  Endif
Endfor
End

Function OPC_QC8(OPC_10000nm, Flagw_OPc)

Wave Flagw_OPc
Wave OPC_10000nm
duplicate/o OPC_10000nm, MX_QC_OPc_10000nm

Variable index
index=0
For (index=0; index<dimsize(MX_QC_OPc_10000nm, 0); index+=1)
  if (Flagw_OPc[index]==2)
    MX_QC_OPc_10000nm[index][p]=NaN
  Endif
Endfor
End

```

- 4.2. Copier et coller la « wave » appelée « Flagwv_OPC » du plus récent document de traitement des données du OPC.
- 4.3. Disposer côte à côte les « wave » : « opc_date_time » et « Flagwv_OPC » et égaliser ces deux « wave » afin qu'elles soient de même longueur.
- 4.4. Changer dans « Flagwv_OPC » les zéros en chiffre 2, lorsqu'il faut retirer une donnée.
 - 4.4.1. Lorsqu'on efface une donnée, celle-ci correspond soit à une donnée erronée ou bien lorsque le système a été ouvert.
- 4.5. Faire procéder la fonction « OPC_QC_all() ».
 - 4.5.1. Une fois cette fonction procédée, plusieurs « wave » seront doublées, mais avec le suffixe « MX_QC » devant, ce qui indique que le contrôle qualité a été effectué sur ces données.
5. Pour comparer les données du OPC avec d'autres instruments, il faut les mettre en heure, soit effectuer le « regrid ».
 - 5.1. Pour préparer les données au « regrid », il faut créer deux nouvelles « wave » de temps afin d'avoir un temps de départ et un temps de fin arrangés selon le « regrid » que l'on veut effectuer.
 - 5.1.1. Ouvrir et utiliser la fonction « OPC_Time_for_Regrid.ipf » et changer en conséquence de la longueur de la « wave » de temps voulu et selon le temps de référence.
 - 5.1.1.1. Fonction « OPC_Time_for_Regrid.ipf » qui a été créée dans le cadre de cette recherche :

Function OPC_Time_for_Regrid (OPC_DateTime)

wave OPC_DateTime

// Modifier les chiffres dans les parenthèses selon la longueur voulue

make/o/d/n = (17084) opc_datetime_start

make/o/d/n = (17083) opc_datetime_end

// Modifier la cellule utiliser dans les [] et ensuite ajuster l'heure selon l'heure indiquer dans la cellule choisie pour remettre le tout à une heure juste

opc_datetime_start = OPC_DateTime [0] + (x*60*60) - (53*60) - 50

opc_datetime_end = OPC_DateTime [0] + (x*60*60) + (60*60) - (53*60) - 50

End

5.1.2. Appliquer la fonction afin de créer les « wave » : « `opc_datetime_start` » et « `opc_datetime_end` » voulu.

5.2. Ouvrir la procédure « `Regrid_wavematrix-progress_bar_for_matrix` ».

5.3. Utiliser selon le type de données utilisées, soit la fonction pour les matrices ou bien celles pour une « wave » simple afin d'effectuer le changement des données selon l'heure voulue.

5.3.1. Ne surtout pas oublier de changer le nom de toutes nouvelles « wave » créées avec cette fonction.

III. Analyse des résultats pour le PAX

1. Ouvrir le dossier « `PAX_toolkit.pxt` », présent dans le dossier « *Package Pax* », « *Igor procedures* ».

1.1. Lorsqu'une première fenêtre apparaît dans l'expérience Igor, cliquer sur « Look for Folder », pour ensuite cliquer sur « Browse » et finalement sélectionner le document « Igor procedures » et cliquer sur « OK » deux fois de suite.

2. Cliquer sur « Load PAX data (user-selected days) ».

2.1. Cela va ouvrir une fenêtre allant directement dans les dossiers de l'ordinateur.

2.1.1. Il suffit d'avoir au préalable toutes les données du PAX (soit 405 nm ou 870 nm) devant être analysées dans un dossier à part dans l'ordinateur, afin de le sélectionner pour le téléchargement des données dans la session Igor.

3. Une fois toutes les données téléchargées correctement, cliquer sur « Reprocess zeros » et effectuer le contrôle qualité (QC) de ces données.

3.1. Copier et coller la fonction « `Remove_Data_PAX870_all ()` » pour le traitement de données du PAX 870 nm et « `Remove_Data_PAX405_all ()` » pour le traitement de données du PAX 405 nm, se trouvant dans la plus récente version de traitement de données de chacun des PAX, dans la fenêtre procédure (Ctrl M) de l'expérience Igor respective.

3.1.1.1. Fonction «Remove_Data_PAX405_all () » et la fonction « Remove_Data_PAX870_all () » qui a été créée dans le cadre de cette recherche :

```

Function Remove_Data_PAX405_all ()
    Remove_Data_Pax405 (20350, 20510)
    Remove_Data_Pax405 (39780, 39980)
    Remove_Data_Pax405 (58460, 58670)
    Remove_Data_Pax405 (70120, 70320)
    Remove_Data_Pax405 (99280, 99480)
    Remove_Data_Pax405 (112940, 113120)
    Remove_Data_Pax405 (129500, 129700)
    Remove_Data_Pax405 (147350, 147500)
    Remove_Data_Pax405 (167150, 167380)
    Remove_Data_Pax405 (187690, 187790)
    Remove_Data_Pax405 (211880, 212080)
    Remove_Data_Pax405 (230700, 230800)
    Remove_Data_Pax405 (247427, 250096)
    Remove_Data_Pax405 (252668, 252751)
    Remove_Data_Pax405 (254622, 254645)
    Remove_Data_Pax405 (257331, 258174)
    Remove_Data_Pax405 (297628, 301998)
    Remove_Data_Pax405 (303196, 324583)
    Remove_Data_Pax405 (279380, 279495)
    Remove_Data_Pax405 (356616, 356732)
    Remove_Data_Pax405 (485229, 485346)
    Remove_Data_Pax405 (506721, 506837)
    Remove_Data_Pax405 (528583, 528693)
    Remove_Data_Pax405 (547182, 547294)
    Remove_Data_Pax405 (566168, 585797)
    Remove_Data_Pax405 (587680, 587800)
    Remove_Data_Pax405 (660984, 661126)
    Remove_Data_Pax405 (745750, 746427)
    Remove_Data_Pax405 (765579, 765702)
    Remove_Data_Pax405 (787093, 787212)
    Remove_Data_Pax405 (808156, 808277)
    Remove_Data_Pax405 (826864, 826983)
    Remove_Data_Pax405 (846033, 846160)
    Remove_Data_Pax405 (864852, 864964)
    Remove_Data_Pax405 (883675, 883795)
    Remove_Data_Pax405 (921618, 924682)

    Remove_Data_Pax405 (142385, 142385)
    Remove_Data_Pax405 (150093, 150094)
    Remove_Data_Pax405 (220089, 220090)
    Remove_Data_Pax405 (356191, 356193)
    Remove_Data_Pax405 (358937, 358939)
    Remove_Data_Pax405 (453280, 453281)
    Remove_Data_Pax405 (738441, 738446)

    wave BC_Mass_ug_m3_
    wave pax_rh
    wave Cell_Temperature_C_
    wave pax_tdew
    wave Analog_Input_1
    wave Analog_Input_2
    wave HK_Spare_U13_CH2
    wave HK_Spare_U13_CH3
    wave HK_Spare_U13_CH4
    wave HK_Spare_U13_CH5
    wave HK_Case_Spare1
    wave HK_Case_Spare2
    wave HK_Spare_U85_CH0
    wave HK_plus5V
    wave HK_3_3V
    wave HK_Spare_U85_CH3
    wave HK_5Vdig
    wave HK_Unused_405_0
    wave HK_Spare_U85_CH6
    wave HK_Spare_U85_CH7
    wave HK_Unused_405_1
    wave HK_Unused_405_2
    wave HK_Unused_405_3
    wave HK_minus5V
    wave HK_Cell_Pressure_mbar_
    wave HK_Inlet_Pressure_mbar_
    wave HK_Sample_Pump_Vac_mbar_
    wave HK_12V
    wave Sample_Count
    wave Mode
    wave Countdown_Timer_secs_
    wave Disk_Free_Space_Gbytes_
    wave Laser_On_Time_hours_
    wave Spare_1
    wave USB_Status
    wave Alarm
    wave Local_Date
    wave Local_Time
    wave pax_bc
    wave pax_bsca
    wave pax_babs
    wave pax_pressure
    wave pax_cell_t
    wave pax_babs_raw
    wave pax_babs_bkg
    wave pax_bsca_raw
    wave pax_bsca_bkg

    Analog_Input_1[index] = NaN
    Analog_Input_2[index] = NaN
    HK_Spare_U13_CH2[index] = NaN
    HK_Spare_U13_CH3[index] = NaN
    HK_Spare_U13_CH4[index] = NaN
    HK_Spare_U13_CH5[index] = NaN
    HK_Case_Spare1[index] = NaN
    HK_Case_Spare2[index] = NaN
    HK_Spare_U85_CH0[index] = NaN
    HK_plus5V[index] = NaN
    HK_3_3V[index] = NaN
    HK_Spare_U85_CH3[index] = NaN
    HK_5Vdig[index] = NaN
    HK_Unused_405_0[index] = NaN
    HK_Spare_U85_CH6[index] = NaN
    HK_Spare_U85_CH7[index] = NaN
    HK_Unused_405_1[index] = NaN
    HK_Unused_405_2[index] = NaN
    HK_Unused_405_3[index] = NaN
    HK_minus5V[index] = NaN
    HK_Cell_Pressure_mbar_[index] = NaN
    HK_Inlet_Pressure_mbar_[index] = NaN
    HK_Sample_Pump_Vac_mbar_[index] = NaN
    HK_12V[index] = NaN
    Sample_Count[index] = NaN
    Mode[index] = NaN
    Countdown_Timer_secs_[index] = NaN
    Disk_Free_Space_Gbytes_[index] = NaN
    Laser_On_Time_hours_[index] = NaN
    Spare_1[index] = NaN
    USB_Status[index] = NaN
    Alarm[index] = NaN
    Local_Date[index] = NaN
    Local_Time[index] = NaN
    pax_bc[index] = NaN
    pax_bsca[index] = NaN
    pax_babs[index] = NaN
    pax_pressure[index] = NaN
    pax_cell_t[index] = NaN
    pax_babs_raw[index] = NaN
    pax_babs_bkg[index] = NaN
    pax_bsca_raw[index] = NaN
    pax_bsca_bkg[index] = NaN

Endfor

End

variable index
index = v_start
For (index = v_start; index < v_end; index+=1)
    Sec_UTC[index] = NaN
    DOY_UTC[index] = NaN
    Year_UTC[index] = NaN
    Sec_Local[index] = NaN
    DOY_Local[index] = NaN
    Year_Local[index] = NaN
    Bscat_1_Mm_[index] = NaN
    scat_raw[index] = NaN
    Babs_1_Mm_[index] = NaN
    pax_babs_phase[index] = NaN
    pax_babs_noise[index] = NaN
    pax_laser_power[index] = NaN
    Laser_power_phase_deg_[index] = NaN
    Q_factor[index] = NaN
    Mic_press_at_res_freq_dB_[index] = NaN
    Resonance_frequency_Hz_[index] = NaN
    Bkgrnd_Bscat_1_Mm_[index] = NaN
    mic_raw[index] = NaN
    Bkgrnd_Babs_1_Mm_[index] = NaN
    pax_babs_phase_bkg[index] = NaN
    Bext_1_Mm_[index] = NaN
    Single_Scat_Albedo[index] = NaN
    BC_Mass_ug_m3_[index] = NaN
    pax_rh[index] = NaN
    Cell_Temperature_C_[index] = NaN
    pax_tdew[index] = NaN

```


Function Remove_Data_PAX870_all ()

```
Remove_Data_Pax870 (20357, 20517)
Remove_Data_Pax870 (39787, 39987)
Remove_Data_Pax870 (58467, 58676)
Remove_Data_Pax870 (72215, 72415)
Remove_Data_Pax870 (101376, 101576)
Remove_Data_Pax870 (115036, 115216)
Remove_Data_Pax870 (131596, 131797)
Remove_Data_Pax870 (149446, 149596)
Remove_Data_Pax870 (169246, 169476)
Remove_Data_Pax870 (189786, 189886)
Remove_Data_Pax870 (213972, 214172)
Remove_Data_Pax870 (232791, 232893)
Remove_Data_Pax870 (281427, 281542)
Remove_Data_Pax870 (249520, 252197)
Remove_Data_Pax870 (254785, 254798)
Remove_Data_Pax870 (256669, 256692)
Remove_Data_Pax870 (259377, 260220)
Remove_Data_Pax870 (297012, 300001)
Remove_Data_Pax870 (301199, 302885)
Remove_Data_Pax870 (340576, 340696)
Remove_Data_Pax870 (469193, 469328)
Remove_Data_Pax870 (490701, 490823)
Remove_Data_Pax870 (512551, 512671)
Remove_Data_Pax870 (531151, 531271)
Remove_Data_Pax870 (549507, 569145)
Remove_Data_Pax870 (571017, 571141)
Remove_Data_Pax870 (643437, 643612)
Remove_Data_Pax870 (729533, 729661)
Remove_Data_Pax870 (737044, 737492)
Remove_Data_Pax870 (748808, 748935)
Remove_Data_Pax870 (770241, 770362)
Remove_Data_Pax870 (791306, 791432)
Remove_Data_Pax870 (810016, 810136)
Remove_Data_Pax870 (829188, 829318)
Remove_Data_Pax870 (848008, 848149)
Remove_Data_Pax870 (866831, 866952)
Remove_Data_Pax870 (904765, 905110)
Remove_Data_Pax870 (310525, 315626)

Remove_Data_Pax870 (144481, 144482)
Remove_Data_Pax870 (152189, 152190)
Remove_Data_Pax870 (197429, 197429)
Remove_Data_Pax870 (222181, 222182)
Remove_Data_Pax870 (340157, 340158)
Remove_Data_Pax870 (342958, 342960)
```

```
wave Bext_1_Mm_
wave Single_Scat_Albedo
wave BC_Mass_ug_m3_
wave pax_rh
wave Cell_Temperature_C_
wave pax_tdew
wave Analog_Input_1
wave Analog_Input_2
wave HK_Spare_U13_CH2
wave HK_Spare_U13_CH3
wave HK_Spare_U13_CH4
wave HK_Spare_U13_CH5
wave HK_Case_Temperature_C_
wave HK_Case_Pressure_mbar_
wave HK_Spare_U85_CH0
wave HK_plus5V
wave HK_3_3V
wave HK_Spare_U85_CH3
wave HK_5Vdig_
wave HK_Spare_U85_CH5
wave HK_Spare_U85_CH6
wave HK_Spare_U85_CH7
wave HK_Laser_PD_Current_Amp_
wave HK_Laser_Current_Amp_
wave HK_Laser_Temp_C_
wave HK_minus5V
wave HK_Cell_Pressure_mbar_
wave HK_Inlet_Pressure_mbar_
wave HK_Sample_Pump_Vac_mbar_
wave HK_12V
wave Sample_Count
wave Mode
wave Countdown_Timer_secs_
wave Disk_Free_Space_Gbytes_
wave Laser_On_Time_hours_
wave Spare_1
wave USB_Status
wave Alarm
wave Local_Date
wave Local_Time
wave pax_bc
wave pax_bscs
wave pax_babs
wave pax_pressure
wave pax_cell_t
wave pax_babs_raw
wave pax_babs_bkg
wave pax_bscs_raw
wave pax_bscs_bkg

variable index
index = v_start
For (index = v_start; index < v_end; index+=1)
```

```
HK_Spare_U13_CH5[index] = NaN
HK_Case_Temperature_C [index] = NaN
HK_Case_Pressure_mbar [index] = NaN
HK_Spare_U85_CH0[index] = NaN
HK_plus5V[index] = NaN
HK_3_3V[index] = NaN
HK_Spare_U85_CH3[index] = NaN
HK_5Vdig[index] = NaN
HK_Spare_U85_CH5[index] = NaN
HK_Spare_U85_CH6[index] = NaN
HK_Spare_U85_CH7[index] = NaN
HK_Laser_PD_Current_Amp [index] = NaN
HK_Laser_Current_Amp [index] = NaN
HK_Laser_Temp_C [index] = NaN
HK_minus5V[index] = NaN
HK_Cell_Pressure_mbar [index] = NaN
HK_Inlet_Pressure_mbar [index] = NaN
HK_Sample_Pump_Vac_mbar [index] = NaN
HK_12V[index] = NaN
Sample_Count[index] = NaN
Mode[index] = NaN
Countdown_Timer_secs [index] = NaN
Disk_Free_Space_Gbytes [index] = NaN
Laser_On_Time_hours [index] = NaN
Spare_1[index] = NaN
USB_Status[index] = NaN
Alarm[index] = NaN
Local_Date[index] = NaN
Local_Time[index] = NaN
pax_bc[index] = NaN
pax_bscs[index] = NaN
pax_babs[index] = NaN
pax_pressure[index] = NaN
pax_cell_t[index] = NaN
pax_babs_raw[index] = NaN
pax_babs_bkg[index] = NaN
pax_bscs_raw[index] = NaN
pax_bscs_bkg[index] = NaN
```

endifor

end

End

Function Remove_Data_Pax870 (v_start, v_end)

```
variable v_start
variable v_end
```

```
wave Sec.UTC
wave DOY.UTC
wave Year.UTC
wave Sec.Local
wave DOY.Local
wave Bscat_1_Mm_
wave scat_raw
wave Babs_1_Mm_
wave pax_babs_phase
wave pax_babs_noise
wave pax_laser_power
wave Laser_power_phase_deg_
wave Q_factor
wave Mic_press_at_res_freq_dB_
wave Resonance_frequency_Hz_
wave Bkgrnd_Bscat_1_Mm_
wave mic_raw
wave Bkgrnd_Babs_1_Mm_
wave pax_babs_phase_bkg
```

```
Sec.UTC[index] = NaN
DOY.UTC[index] = NaN
Year.UTC[index] = NaN
Sec.Local[index] = NaN
DOY.Local[index] = NaN
Year.Local[index] = NaN
Bscat_1_Mm [index] = NaN
scat_raw[index] = NaN
Babs_1_Mm [index] = NaN
pax_babs_phase[index] = NaN
pax_babs_noise[index] = NaN
pax_laser_power[index] = NaN
Laser_power_phase_deg [index] = NaN
Q_factor[index] = NaN
Mic_press_at_res_freq_dB [index] = NaN
Resonance_frequency_Hz [index] = NaN
Bkgrnd_Bscat_1_Mm [index] = NaN
mic_raw[index] = NaN
Bkgrnd_Babs_1_Mm [index] = NaN
pax_babs_phase_bkg[index] = NaN
Bext_1_Mm [index] = NaN
Single_Scat_Albedo[index] = NaN
BC_Mass_ug_m3 [index] = NaN
pax_rh[index] = NaN
Cell_Temperature_C [index] = NaN
pax_tdew[index] = NaN
Analog_Input_1[index] = NaN
Analog_Input_2[index] = NaN
HK_Spare_U13_CH2[index] = NaN
HK_Spare_U13_CH3[index] = NaN
HK_Spare_U13_CH4[index] = NaN
```

4. Pour comparer les données du PAX avec d'autres instruments, il faut les mettre en heure, soit effectuer le « regrid ».

4.1. Pour préparer les données au « regrid », il faut créer deux nouvelles « wave » de temps afin d'avoir un temps de départ et un temps de fin arrangés selon le « regrid » que l'on veut effectuer.

4.1.1. Ouvrir et utiliser la fonction « PAX_Time_for_Regrid_h.ipf » et changer en conséquence de la longueur de la « wave » de temps voulu et selon le temps de référence.

4.1.1.1. Fonction « PAX_Time_for_Regrid_h.ipf » qui a été créée dans le cadre de cette recherche :

```
Function PAX_Time_for_Regrid_h (pax_datetime)
```

```
wave pax_datetime
```

```
// Modifier les chiffres dans les parenthèses selon la longueur voulue
```

```
make/o/d/n = (8040) pax_datetime_start
```

```
make/o/d/n = (8039) pax_datetime_end
```

```
// Modifier la cellule utiliser dans les [ ] et ensuite ajuster l'heure selon l'heure indiquer dans la cellule choisie pour remettre le tout à une heure juste
```

```
pax_datetime_start = pax_datetime [10] + (x*60*60) - (05*60) - 50
```

```
pax_datetime_end = pax_datetime [10] + (x*60*60) + (60*60) - (05*60) - 50
```

```
End
```

4.1.2. Appliquer la fonction afin de créer les « wave » : « pax_datetime_start » et « pax_datetime_end » voulue.

4.2. Ouvrir la procédure « Regrid_wavematrix-progress_bar_for_matrix ».

4.3. Utiliser selon le type de données utilisées, soit la fonction pour les matrices ou bien celles pour une « wave » simple afin d'effectuer le changement des données selon l'heure voulue.

4.3.1. Ne surtout pas oublier de changer le nom de toutes nouvelles « wave » créées avec cette fonction.

Section B – Manuel de calibration des PAX

Groupe Hayes

Photoacoustic Extinctionmeter

(PAX)

Procédures de calibration

Fait par : Samantha Tremblay

Table des matières

<i>Trucs et astuces à savoir pour l'utilisation du PAX</i>	<i>P. 3</i>
<i>Comment télécharger les données du PAX avec le programme PMC</i>	<i>P.6</i>
<i>Ouverture et fermeture du PAX</i>	<i>P. 9</i>
<i>Vérification de la puissance laser («Laser Power»)</i>	<i>P. 10</i>
<i>Vérification du bruit acoustique («Acoustic Noise»)</i>	<i>P. 11</i>
<i>Vérification du débit de la pompe («Flow Pomp»)</i>	<i>P. 13</i>
<i>Calibration de l'absorbance (Babs)</i>	<i>P. 14</i>
<i>Calibration de la diffusion («Scattering») (Bscat)</i>	<i>P. 17</i>
<i>Entretien des composantes du PAX (Nettoyage des Lentilles et Cyclones, puis changement du Gel de Silice)</i>	<i>P. 20</i>

Note : La plupart des directives proviennent du *Photoacoustic Extinctionmeter (PAX) Operator Manual*, du *KIT-0063 PM 1 Inlet Cyclone (for PAX) Operator Manual* et du *PAX Maintenance Console (PMC) Software Manual* (3 documents PDF fournis avec l'appareil PAX).

Trucs et astuces à savoir pour l'utilisation du PAX

1. Le PAX doit être calibré à tous les 6 mois ou avant et après une expérimentation.
2. Tout changement à effectuer ou prise de données dans le PAX doit être fait à l'aide d'un ordinateur.
 - 2.1. Pour la prise de données, il faut utiliser le logiciel PMC. (Le logiciel PMC de l'ordinateur utilisé devrait ressembler à la figure 1 à son ouverture.)
 - 2.1.1. Il est important de connecter un seul PAX à la fois, et une fois l'utilisation terminée, le déconnecter du logiciel PMC).

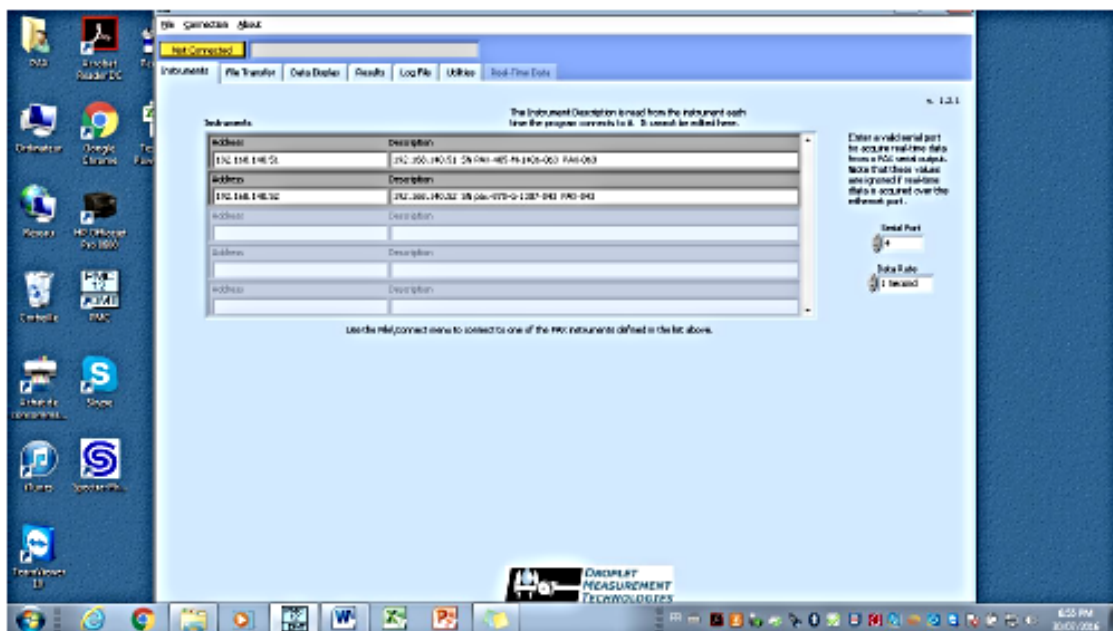


Figure 1. Représentation du logiciel PMC.

- 2.2. Pour effectuer un changement dans les paramètres ou autres, sur l'écran tactile du PAX, il faut utiliser à la place, l'interface disponible sur ordinateur. Pour accéder à cette interface, il faut entrer dans la barre de recherche directement (pas sur une page internet comme *Google*, mais dans le moteur de recherche directement de *Chrome* ou *Firefox* par exemple) :

Pour le PAX 870 nm : 192.168.140.52/www/pax/pax.html

Pour le PAX 405 nm : 192.168.140.51/www/pax/pax.html

- 2.2.1. Le chiffre inscrit au début du site internet (au-dessus), correspond au code IP du PAX correspondant. Il est essentiel que l'ordinateur utilisé pour le fonctionnement du PAX ait un code IP ressemblant à ceci : 192.168.140. 5#, et ayant un chiffre autre que celui des PAX utilisés (par exemple 51 ou 52 à la place de ## dans le code IP proposé, ce qui ressemblerait à un IP : 192.168.140.50).

- 2.2.2. Il est important de ne pas laisser ouverte cette fenêtre de navigation sur l'ordinateur, ainsi une fois son utilisation terminée, il faut la fermer (empêche des «bogues» ou des «freeze» de l'appareil).
3. En tout temps, lorsque l'appareil est en fonction ou pas (pas lors de la prise de mesure continue lors d'une expérience), il faut laisser un filtre à l'entrée où entre l'air dans le PAX.
 4. Il faut toujours vérifier si l'heure du PAX est bonne.
 - 4.1. Pour changer l'heure du PAX, il faut peser dans la case où se trouve l'heure.
 - 4.2. Dans la nouvelle fenêtre, sélectionner l'onglet «Local Time» et changer l'heure à l'aide des flèches.
 - 4.3. Cliquer sur accepter pour confirmer l'heure.
 - 4.4. Il est possible qu'il faille redémarrer le PAX (surtout le PAX 870 nm), afin que l'appareil se configure avec la nouvelle heure.
 - 4.5. Une fois l'heure changée, pour retourner à la page principale, il faut peser sur le menu principal du PAX (en haut à gauche où il est inscrit le nom du PAX) et peser sur «Data».
 5. En cas de «freeze» de l'écran du PAX, juste redémarrer le PAX (attendre au moins 2-3 minutes après sa fermeture avant de le rallumer).
 6. Lors de l'installation de montage impliquant plusieurs connexions (par exemple entre des tubes de cuivre), toujours effectuer une vérification de possibilité de fuite à l'aide d'une flamme d'un briquet, par exemple.
 - 6.1. Le test de fuite à la flamme s'effectue en passant la flamme d'un briquet pendant 10 secondes environ, à l'endroit où se trouve une jonction d'un tube avec un autre. S'il n'y a aucune augmentation extrême d'absorbance ou de diffusion ou d'autres paramètres, ceci indique que la jonction est étanche et qu'il n'y a pas de fuite.
 - 6.2. En cas de fuite, s'assurer que chaque jonction soit bien vissée et qu'il n'y a pas de tube fissuré.
 7. Changement de paramètre dans le PAX :
 - 7.1. Pour effectuer le «Zero Now», il faut aller dans le menu principal du PAX, peser sur «Zero» et ensuite sur «Zero Now», et le PAX va immédiatement effectuer le zéro (correspondant à *Flush-Zero-Flush*, ce qui dure environ 45 secondes).
 - 7.2. Pour changer le temps d'intervalle de prise de zéro (soit le temps de «Measurement», il faut aller dans le menu principal du PAX, peser sur «Zero» et ensuite sur «Set Zero Interval (Seconds)», ce qui va changer le temps de «Measurement» voulu, puis peser sur «Accept».
 - 7.3. Pour changer la fréquence d'enregistrement, il faut aller dans le menu principal du PAX, peser sur «More», ensuite sur «Setup», puis sur «Data Average Time (Secs)». Rendu sur cette page, il ne reste plus qu'à changer au temps voulu (allant de 1 – 60 secondes), puis peser sur «Accept».
 - 7.4. Une autre option pour changer l'heure du PAX est d'aller sur son menu principal, peser sur «Time», ensuite sur «Local Time», changer à l'heure voulue, puis peser sur «Accept».

- 7.5. Pour changer les paramètres de calibration après avoir effectué la calibration de l'absorbance et la calibration de la diffusion, il faut aller sur le menu principal du PAX, ensuite peser sur «More», ensuite peser sur «Calib», puis sur «Scattering (VMm/W)» pour changer la valeur de la calibration en diffusion, puis sur «Microphone (mV/Pa)» pour changer la valeur de la calibration en absorbance. Finalement pour terminer le changement de valeur, il faut peser sur «Accept».
8. Il est important de regarder à quelle fréquence il faut effectuer l'entretien ou le changement de composante du PAX.
- 8.1. Exemple, en général, il faut nettoyer le cyclone à chaque une à trois semaines.
9. Vérification du sens que le cyclone est posé sur l'appareil, il doit être disposé comme démontré sur la figure 2.

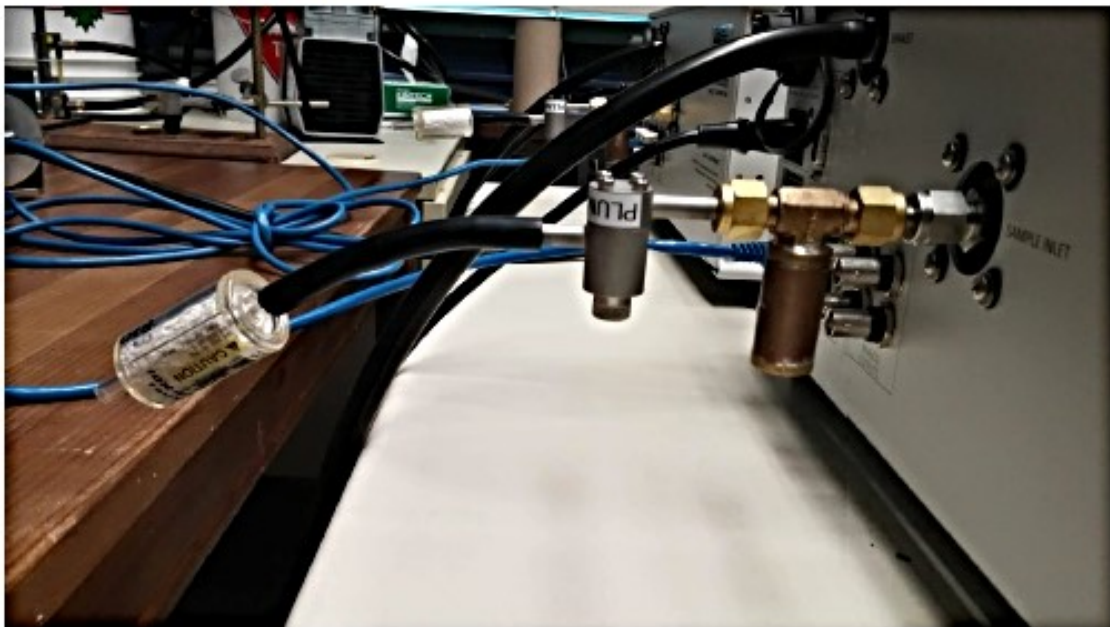


Figure 2. Représentation du branchement du cyclone PM₁.

Comment télécharger les données du PAX avec le programme PMC

1. Ouvrir le programme PMC (figure 3, étape 1).
2. Connecter le PAX qu'il faut télécharger les données (figure 3, étape 2).
 - 2.1. Pour le PAX 405 nm : 192.168.140.51 SN PAX-405-M-1406-063 PAX-063.
 - 2.2. Pour le PAX 870 nm : 192.168.140.52 SN pax-870-G-1307-043 PAX-043.

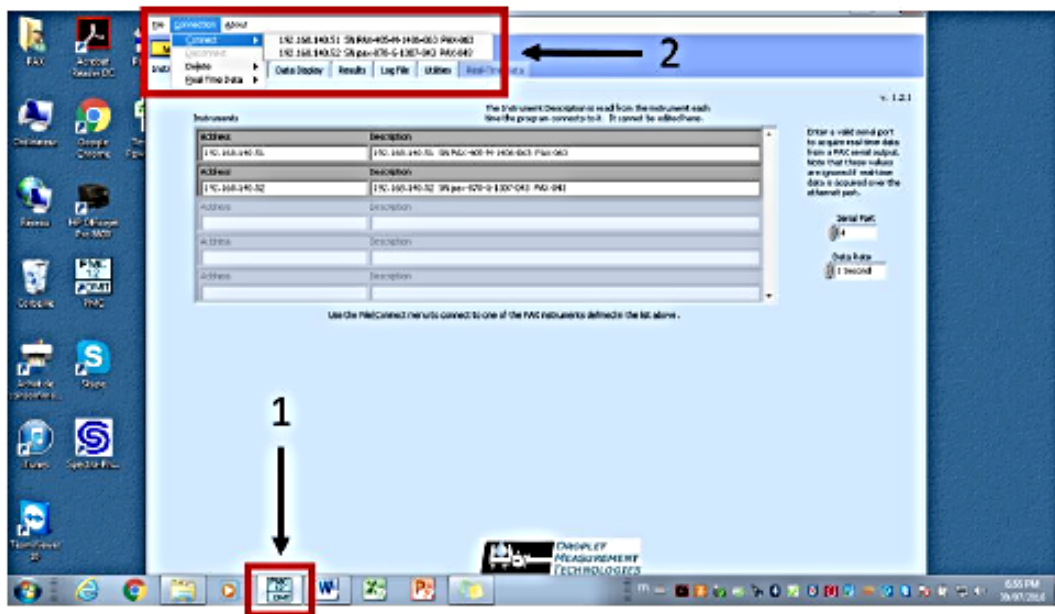


Figure 3. Utilisation du programme PMC étapes 1 et 2.

3. Attendre que la case de connexion vire au vert et soit écrit «*Connected to*» (figure 4, étape 3).
4. Choisir le dossier où seront importées les données du PAX sous forme de document *Excel* (figure 4, étape 4).
 - 4.1. Pour choisir le dossier d'importation, peser la case en haut à droite représentant un fichier ouvert (figure 5, étape 5).
 - 4.2. Dans la fenêtre qui apparaît, choisir le dossier correspondant au PAX choisi au départ (figure 5, étape 6).
 - 4.2.1. PAX 405 nm : PAX405_063.
 - 4.2.2. PAX 870 nm : PAX870_043.
 - 4.3. Une fois le document sélectionné, peser sur la case «*Sélectionner ce répertoire*» (figure 5, étape 7).
5. Sélectionner les fichiers des données à importer dans le dossier sélectionné (figure 4, étape 8).

6. Peser sur la case «*Transfer All Selected Data Files To Local Computer*» pour importer les dossiers choisis dans le fichier approprié (figure 4, étape 9).

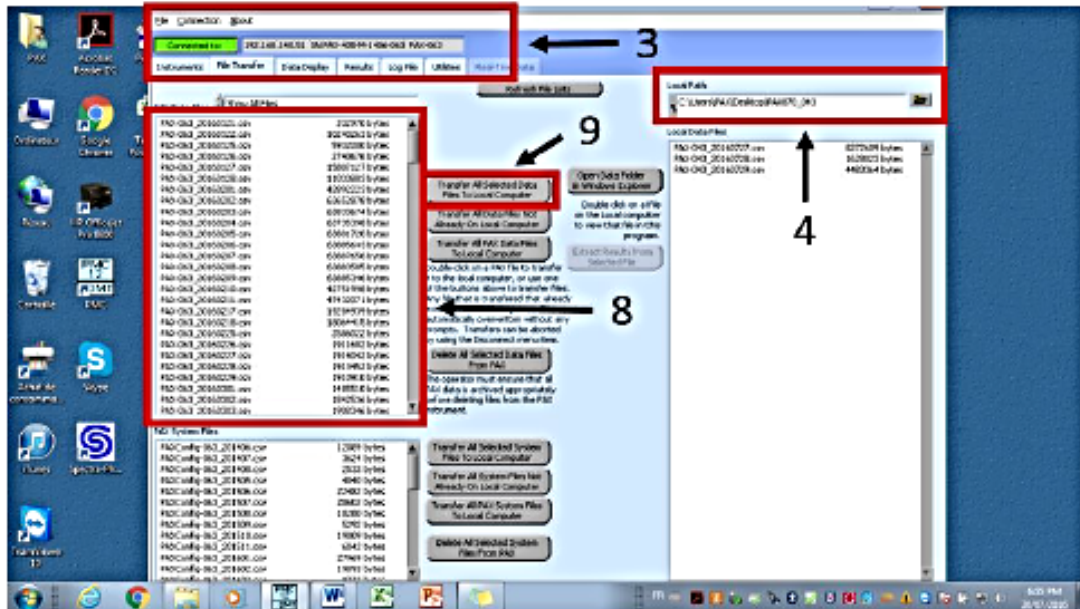


Figure 4. Utilisation du programme PMC étapes 3, 4, 8 et 9.

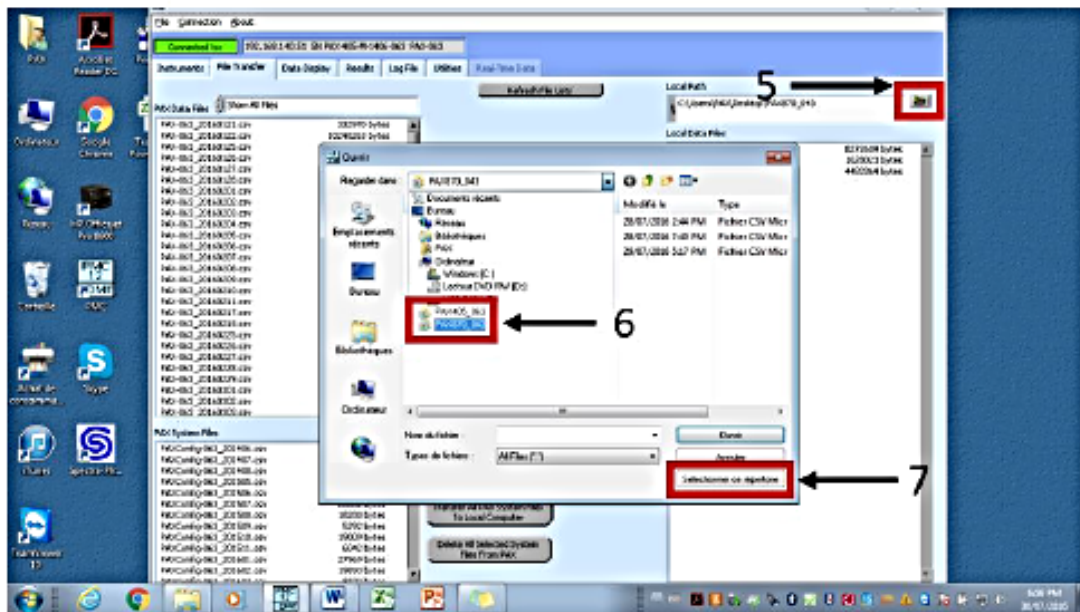


Figure 5. Utilisation du programme PMC étapes 5, 6 et 7.

7. Récupérer les données du PAX dans les fichiers correspondants, choisis selon le PAX, lors de l'importation des données dans le programme PMC (figure 6, étape 10).

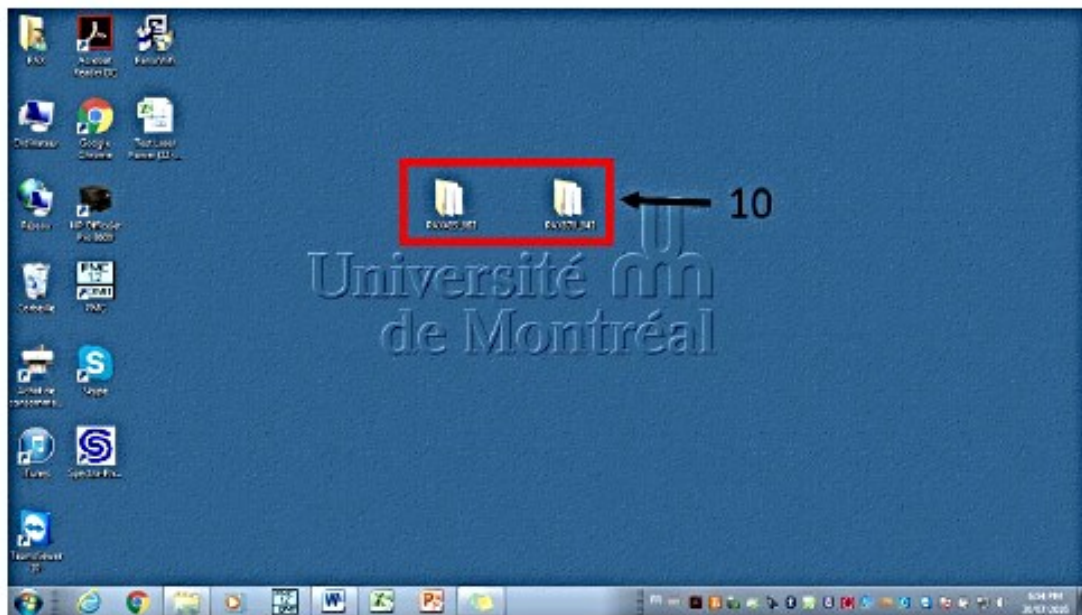


Figure 6. Emplacement des fichiers d'exportation des données du PAX (étape 10).

8. Pour d'autres informations allées voir la section 3.0 *Operation* pages 6 et la section 4.2 *File Transfer Tab* pages 8 du manuel de l'opérateur du programme PMC.

Ouverture et fermeture du PAX

Ouverture

1. Vérifier qu'il ne manque aucun équipement ou accessoire sur le PAX en entrant dans la pièce où il se trouve.
 - 1.1.1. Pour déterminer s'il manque un équipement ou un accessoire, il faut se référer à l'état que le PAX était la veille ou lors de la dernière utilisation.
2. Brancher et allumer le PAX. Avant toute prise de mesure, attendre environ 1 heure, afin que le laser à l'intérieur du PAX soit réchauffé.
3. Une fois le PAX complètement ouvert, s'assurer que l'heure affichée soit la bonne, au sinon il faut changer l'heure de celui-ci.

Fermeture

1. Fermer et débrancher le PAX.
2. Vérifier qu'il ne manque aucun équipement ou accessoire sur le PAX avant de quitter la pièce où il se trouve.
 - 2.1. Pour déterminer s'il manque un équipement ou un accessoire, il faut se référer à l'état que le PAX était au début de son utilisation le matin.

Vérification de la puissance laser («Laser Power»)

1. Peser sur le bouton «Alarm», positionnée en haut a droit de l'écran principal du PAX.
2. Prendre en note le «Laser Power (W)», le «Bkgrnd Bscat (1/Mm)» et le «Bkgrnd Babs (1/Mm)».
3. Pour le «Laser Power», diviser la valeur obtenue par celle obtenue à la dernière vérification de la puissance laser, et multiplier le tout par 100, afin d'obtenir un pourcentage.
 - 3.1. Si le pourcentage diminue de plus de 10 %, il faut nettoyer les lentilles se trouvant dans le PAX, dans ce manuel (voir page 20).
4. Pour le «Background Scattering», diviser la valeur obtenue par celle obtenue à la dernière vérification, afin d'obtenir un ratio.
 - 4.1. Si le ratio indique que le «Background Scattering» a doublé, il faut nettoyer les lentilles se trouvant dans le PAX.
5. Pour nettoyer les lentilles, il faut juste que l'un des deux critères, ou les 2 critères de changements s'appliquent.
6. Pour savoir la procédure, pour nettoyer les lentilles se rendre à la section : *Entretien des composantes du PAX (Nettoyage des Lentilles et Cyclones, puis Changement du Gel de Silice)* pages 20.
7. Pour d'autres informations aller voir la section 7.3.4 *Laser Calibration* pages 52 du manuel de l'opérateur du PAX.

Vérification du bruit acoustique («Acoustic Noise»)

1. Avant d'effectuer une prise des mesures :
 - 1.1. Allumer seulement un PAX (s'il y a plus d'un PAX à faire l'analyse dans la même pièce).
 - 1.2. S'assurer qu'il n'y a aucun bruit ambiant qui pourrait interférer avec le PAX.
 - 1.3. Il ne faut surtout pas faire de bruit lors de la prise des mesures (aucune musique ou personne qui parle lors de la prise des mesures).
2. Pour la prise des mesures de cette calibration, il faut laisser aller la machine comme à l'habitude et écrire les temps auxquels il se passe quelque chose sur la machine ou dans la pièce (au niveau sonore).
3. Directement avant de prendre les mesures, effectuer un «Zero Now» et s'assurer que le «Measurement» est bien à au moins 600 secondes (étape optionnelle).
4. Pour voir la différence avec et sans filtre, il faut prendre des mesures pendant 10 minutes sans filtre, puis prendre des mesures 10 minutes avec le filtre.
 - 4.1. Lors d'une expérimentation, faire une comparaison entre lorsque le PAX est branché sur le montage et lorsqu'il y a seulement le filtre.
 - 4.1.1. La comparaison avec et sans filtre doit être appliquée seulement avant ou après une expérimentation.
5. Pour analyser les résultats obtenus, il faut prendre les documents du PAX par le logiciel PMC et prendre les données du «Babs (1/Mm)» et du «Babs noise (1/Mm)» et les mettre dans un document *Microsoft Excel*.
6. Dans le document *Microsoft Excel*, prendre pour les temps inscrits dans le cahier de laboratoire, les données pour les deux 10 minutes de prises de mesures avec et sans filtre et les mettre dans deux colonnes distinctes.
7. Faire une troisième colonne nommée «Time» et écrire les chiffres de 1 à ∞ (correspondant au nombre de données pour 10 minutes) dans la colonne.
8. Ouvrir un document *Igor* et transférer les données dans le logiciel.
9. Nommer les colonnes selon ce quelles sont, exemple PAX405_Babs pour les données «Babs (1/Mm)» prises sans filtre sur un PAX à 405 nm, PAX405_BabsN pour les données «Babs noise (1/Mm)» prise sans filtre sur un PAX 405 nm, PAX405_BabsF pour les données «Babs (1/Mm)» prises avec filtre sur un PAX à 405 nm, PAX405_BabsNF pour les données «Babs noise (1/Mm)» prise avec filtre sur un PAX 405 nm.
10. Comparer les données obtenues en effectuant 4 graphiques, comparant chacune des données avec et sans filtre.
11. Pour avoir un bruit acoustique acceptable, il faut que les mesures sans filtre ne diffèrent pas plus de 50 % avec les mesures avec filtres.
12. Voici un exemple des graphiques possible d'avoir (figure 7) :

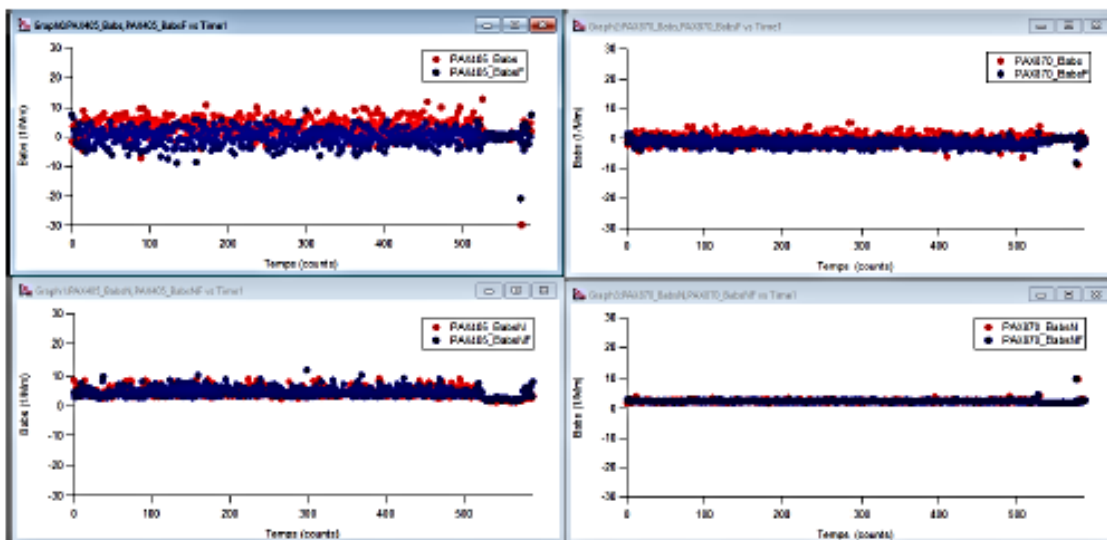


Figure 7. Exemple de graphique obtenu lors de la vérification du bruit acoustique.

Vérification du débit de la pompe («Flow Pomp»)

1. Assembler le montage du *Gilibrator 2*, de la compagnie Gilian[®], comme indiqué dans la figure 8.



Figure 8. Montage fait avec le *Gilibrator 2*, de la compagnie Gilian[®] sur le PAX.

2. Remplir l'instrument d'eau savonneuse fournie par la compagnie jusqu'au moment où l'anneau (une fois descendu) touche à l'eau savonneuse.
 - 2.1. Trop d'eau savonneuse peut engendrer une génération de bulles multiples, ce qui n'est pas bon pour la prise de mesure.
 - 2.2. S'il n'y a pas assez d'eau savonneuse, il ne pourra pas y avoir génération d'une bulle, d'où celle-ci est la clé pour effectuer une mesure du débit de la pompe.
3. Une fois le montage complété et l'eau savonneuse mis en bonne quantité dans l'appareil, il faut allumer celui-ci en pesant sur «ON».
 - 3.1. Une fois l'appareil ouvert, celui-ci va faire un contrôle de tous ces paramètres et à la toute fin, il va afficher chacun des noms de ces paramètres qu'il mesure, ceci est le moment où il est possible de commencer à prendre des mesures.
4. Connecter le *Gilibrator 2* au PAX que l'on veut évaluer (comme indiqué à la figure 8).
5. Pour prendre une mesure, il suffit de faire baisser l'anneau et de le faire remonter tranquillement, afin de former une bulle qui va monter le long du cylindre, ceci va générer une mesure.
6. Refaire cette opération au moins 10 fois, afin d'obtenir environ 10 mesures ressemblantes (variant d'environ $\pm 0,005$ L/min).
7. Déterminer la moyenne des données obtenues et la comparer avec celle obtenue à la dernière vérification effectuée sur le PAX testé.

Calibration de l'absorbance (Babs)

1. Effectuer le montage indiqué par la figure 9.
 - 1.1. Faire attention que la pompe soit branchée et que le montage soit connecté à la pompe au «Pull» et non au «Push».
 - 1.2. S'assurer que le gel de silice utilisé pour la calibration n'est pas trop humide, en cas de doute, changer le gel de silice avant d'effectuer la calibration.
 - 1.3. Avant de commencer la calibration, il ne faut pas brancher directement le montage au PAX, il faut laisser le filtre sur le PAX jusqu'au moment de la prise de mesure.
 - 1.4. S'assurer que le temps de «Measurement» est bien à 600 secondes et que le temps d'enregistrement de mesure se fait à chaque 1 seconde.



Figure 9. Montage de la calibration en absorbance.

2. Avant de commencer à prendre des mesures, écrire dans le cahier de laboratoire, *Zero*, *Filter*, *Abs* et *Filter*, sur une ligne différente à la suite, car ceci représente les différentes

- étapes de la calibration à laquelle il faut inscrire l'heure de début et de fin de la section indiquée (important d'être précis, à la seconde près).
3. Pour commencer le temps de la première section, *Zero*, il faut effectuer le «*Zero Now*». Ce qui indique la fin de cette section (*Zero*) et le début de la prochaine section (*Filter*) est lorsque le *Flush-Zero-Flush* se termine et que le temps de *Measurement* commence.
 4. Pour la seconde section *Filter*, celle-ci doit durer 2 minutes.
 - 4.1. Après que la moitié de la section *Filter* se soit faite, il faut allumer une torche à propane (en prenant soin d'avoir une flamme entre moyenne et grosse), ouvrir la pompe, et positionner la flamme sous le bidon pendant 15 secondes. À la suite des 15 secondes, il faut refermer le système et laisser la pompe fonctionner jusqu'à la prise de mesure de la section *Abs*.
 5. Pour la section *Abs*, celle-ci dure 1 minute, en connectant le système au PAX, en prenant soin d'enlever le filtre, et en ouvrant le système.
 - 5.1. Le maximum à atteindre pour l'absorbance selon la sorte de PAX varie. Exemple, pour un PAX 870 nm, la valeur tourne autour de 5 000 à 10 000 Mm^{-1} , puis pour un PAX 405 nm, la valeur tourne autour de 5 000 à 15 000 Mm^{-1} .
 - 5.1.1. Si la valeur attendue n'est pas dans l'intervalle correspondant à la sorte de PAX utilisée, il faut recommencer la calibration.
 6. Pour la section *Filter*, la seconde et dernière des sections, il faut débrancher le système du PAX, remettre le filtre sur le PAX et fermer la pompe. La prise de mesure pour cette section dure 1 minute.
 7. Une fois les 4 sections terminées et l'heure notée pour chacune de celle-ci dans un cahier de laboratoire, il faut recommencer la calibration (étape 2 à 6), jusqu'à ce que nous ayons un triplicata de calibration.
 - 7.1. Entre l'exécution de calibration, il faut attendre environ 5 minutes.
 8. Prendre les données obtenues pour la calibration à l'aide du logiciel PMC, afin d'analyser les résultats des calibrations.
 9. Les résultats de la calibration sont traités à l'aide d'un document *Microsoft Excel* (nommée PAX###-Calib_ABS_AAAAMMJJ) déjà fait à cet égard.
 10. Voici un exemple des graphiques obtenus à la fin de la calibration (figure 10 et 11) :
Pour la calibration de l'absorbance :

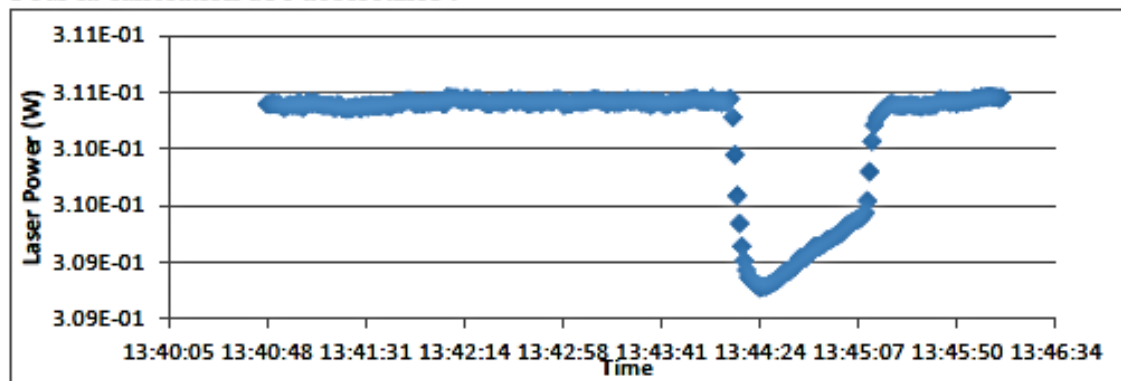


Figure 10. Laser Power During Calibration Procedure.

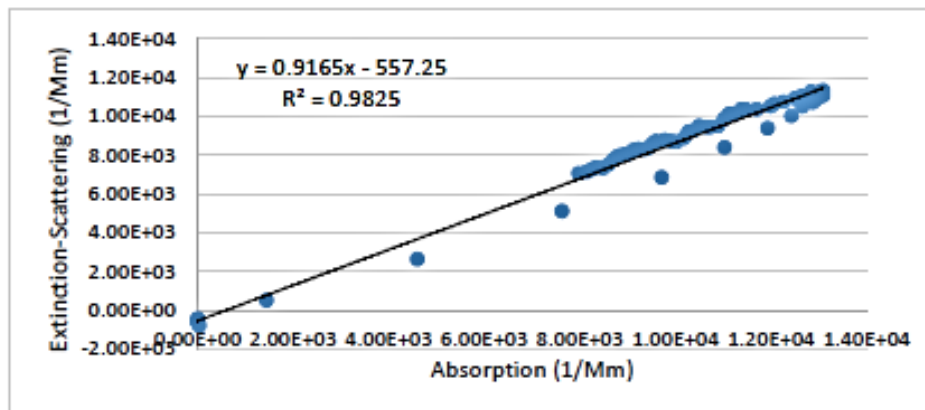


Figure 11. Regression Plot of Calculated [Extinction-Scattering] Measurement against Abs.

11. Une fois la calibration et le traitement des données terminées, il faut changer les valeurs (au besoin) correspondantes à la calibration effectuée dans le système du PAX.
 - 11.1. Pour l'absorbance, il faut peser sur le menu du PAX, ensuite dans «More», puis dans «Calib» et finalement dans «Microphone (mV/Pa)».
 - 11.2. Prendre la valeur affichée à l'écran, puis la diviser par la valeur moyenne des trois pentes du graphique «Regression Plot of Calculated [Extinction-Scattering] Measurement against Abs», obtenues lors du traitement des données.
 - 11.3. Entrer la nouvelle valeur de «Microphone (mV/Pa)» résultant de la division dans le système du PAX, puis peser sur «Accept».
12. Pour d'autres informations allez voir la section 7.3.2 *Absorption Calibration for 870 and 405 nm PAX* pages 49 du manuel de l'opérateur du PAX.

Calibration de la diffusion («Scattering») (Bscat)

1. Effectuer le montage indiqué par la figure 12.
 - 1.1. Faire attention que la pompe soit branchée et que le montage soit connectée à la pompe au «*Push*» et non au «*Pull*».
 - 1.2. S'assurer que le gel de silice utilisé pour la calibration n'est pas trop humide, en cas de doute, changer le gel de silice avant d'effectuer la calibration.
 - 1.3. Avant de commencer la calibration, il ne faut pas brancher directement le montage au PAX, il faut laisser le filtre sur le PAX jusqu'au moment de la prise de mesure.
 - 1.4. S'assurer que le temps de «*Measurement*» est bien à 600 secondes et que le temps d'enregistrement de mesure se fait à chaque 1 seconde.
 - 1.5. Mettre une solution de 20 mL d'eau Milli Q avec 3 bouts de spatule de NaCl dissous (pour donner une solution en NaCl saturée), dans le nébuliseur avant d'effectuer le montage.

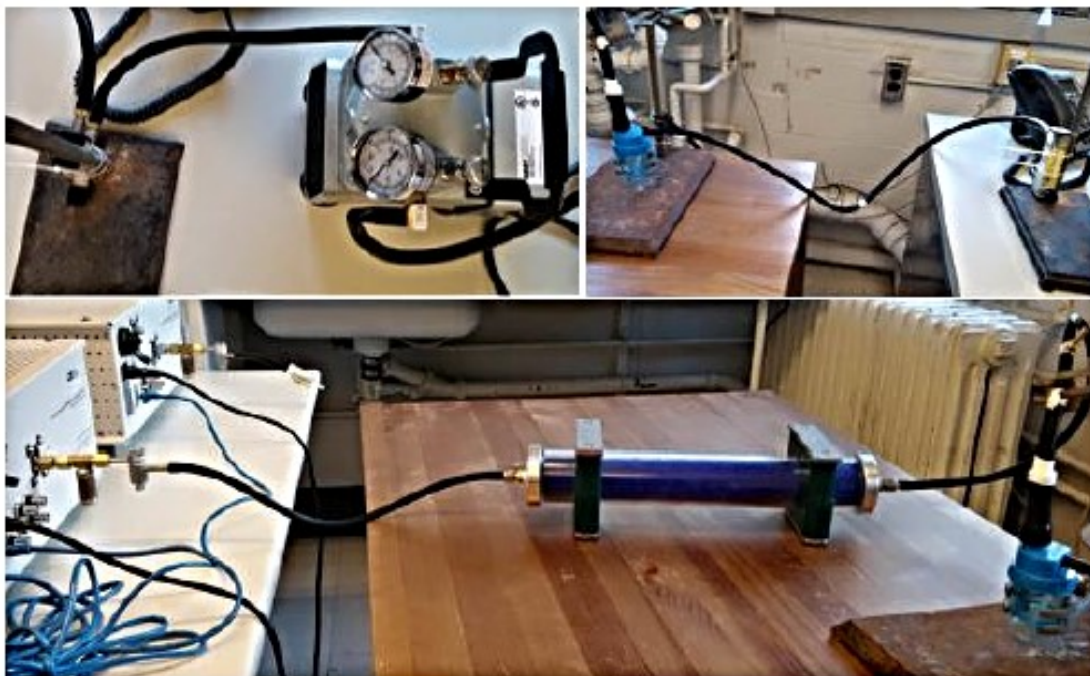


Figure 12. Montage de la calibration de la diffusion.

2. Avant de commencer à prendre des mesures, écrire dans le cahier de laboratoire, *Zero*, *Filter*, *Scat* et *Filter*, sur une ligne différente à la suite, car ceci représente les différentes étapes de la calibration à laquelle il faut inscrire leur de début et de fin de la section indiquer (important d'être précis, à la seconde près).

3. Pour commencer le temps de la première section, *Zero*, il faut effectuer le «*Zero Now*». Ce qui indique la fin de cette section (*Zero*) et le début de la prochaine section (*Filter*) est lorsque le *Flush-Zero-Flush* se termine et que le temps de *Measurement* commence.
4. Pour la seconde section *Filter*, celle-ci doit durer 2 minutes.
5. Pour la section *Scat*, celle-ci dure 1 minute, en connectant le système au PAX, en prenant soin d'enlever le filtre, et en allumant la pompe.
 - 5.1. La pression doit être entre 2-4 sL/min, lorsque la pompe est allumée.
 - 5.1.1. Avec une pompe différente de celle présentée dans l'illustration, le chiffre peut changer. Dans ce cas-là, il faut seulement s'assurer que la nébulisation dans le nébuliseur s'effectue.
 - 5.2. Le maximum à atteindre pour la diffusion selon la sorte de PAX varie. Exemple, pour un PAX 870 nm, la valeur tourne autour de 5 000 Mm^{-1} , puis pour un PAX 405 nm, la valeur tourne autour de 20 000 Mm^{-1} .
 - 5.2.1. Si la valeur attendue n'est pas dans l'intervalle correspondant à la sorte de PAX utilisée, il faut recommencer la calibration.
6. Pour la section *Filter*, la seconde et dernière des sections, il faut débrancher le système du PAX, remettre le filtre sur le PAX et fermer la pompe. La prise de mesure pour cette section dure 1 minute.
7. Une fois les 4 sections terminées et l'heure notée pour chacune de celle-ci dans un cahier de laboratoire, il faut recommencer la calibration (étape 2 à 6), jusqu'à temps d'avoir un triplicata de calibration.
 - 7.1. Entre l'exécution de calibration, il faut attendre environ 5 minutes.
8. Prendre les données obtenues pour la calibration à l'aide du logiciel PMC, afin d'analyser les résultats des calibrations.
9. Les résultats de la calibration sont traités à l'aide d'un document *Microsoft Excel* (nommée PAX###-Calib_SCAT_AAAAMMJJ) déjà fait à cet égard.
10. Voici un exemple des graphiques obtenus à la fin de la calibration (figure 13 et 14) :
Pour la calibration de la diffusion :

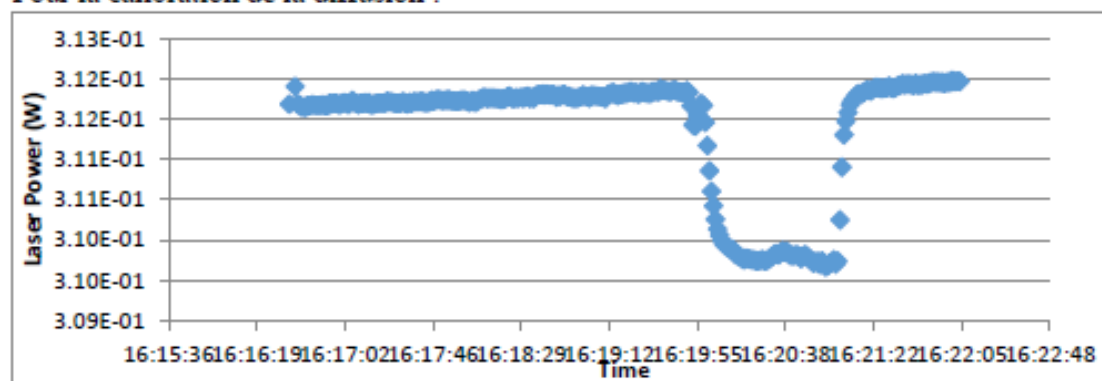


Figure 13. Laser Power During Calibration Procedure.

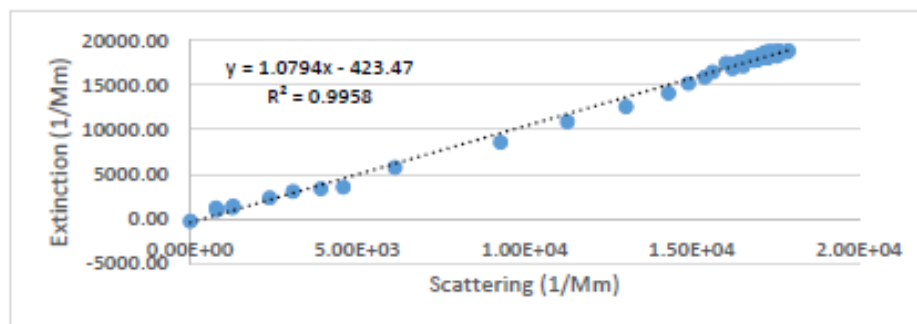


Figure 14. Regression Plot of Calculated [Extinction] Measurement against Bscat.

11. Une fois la calibration et le traitement des données terminés, il faut changer les valeurs (au besoin) correspondant à la calibration effectuée dans le système du PAX.
 - 11.1. Pour la diffusion, il faut peser sur le menu du PAX, puis dans «More», ensuite dans «Calib» et finalement dans «Scattering (VMm/W)».
 - 11.2. Prendre la valeur affichée à l'écran, puis la multiplier par la valeur moyenne des trois pentes du graphique «Regression Plot of Calculated [Extinction] Measurement against Bscat», obtenue lors du traitement des données.
 - 11.3. Entrer la nouvelle valeur de «Scattering (VMm/W)» résultant de la multiplication dans le système du PAX, puis peser sur «Accept».
12. Pour d'autres informations allées voir la section 7.3.1 *Scattering Calibration* pages 45 du manuel de l'opérateur du PAX.

Entretien des composantes du PAX (Nettoyage des Lentilles et Cyclones, puis Changement du Gel de Silice)

Nettoyage des Lentilles

1. S'assurer que le PAX est complètement fermé et débranché avant toutes manipulations à l'intérieur.
2. Retirer les deux lentilles du PAX en suivant les étapes présentées dans la figure 15.

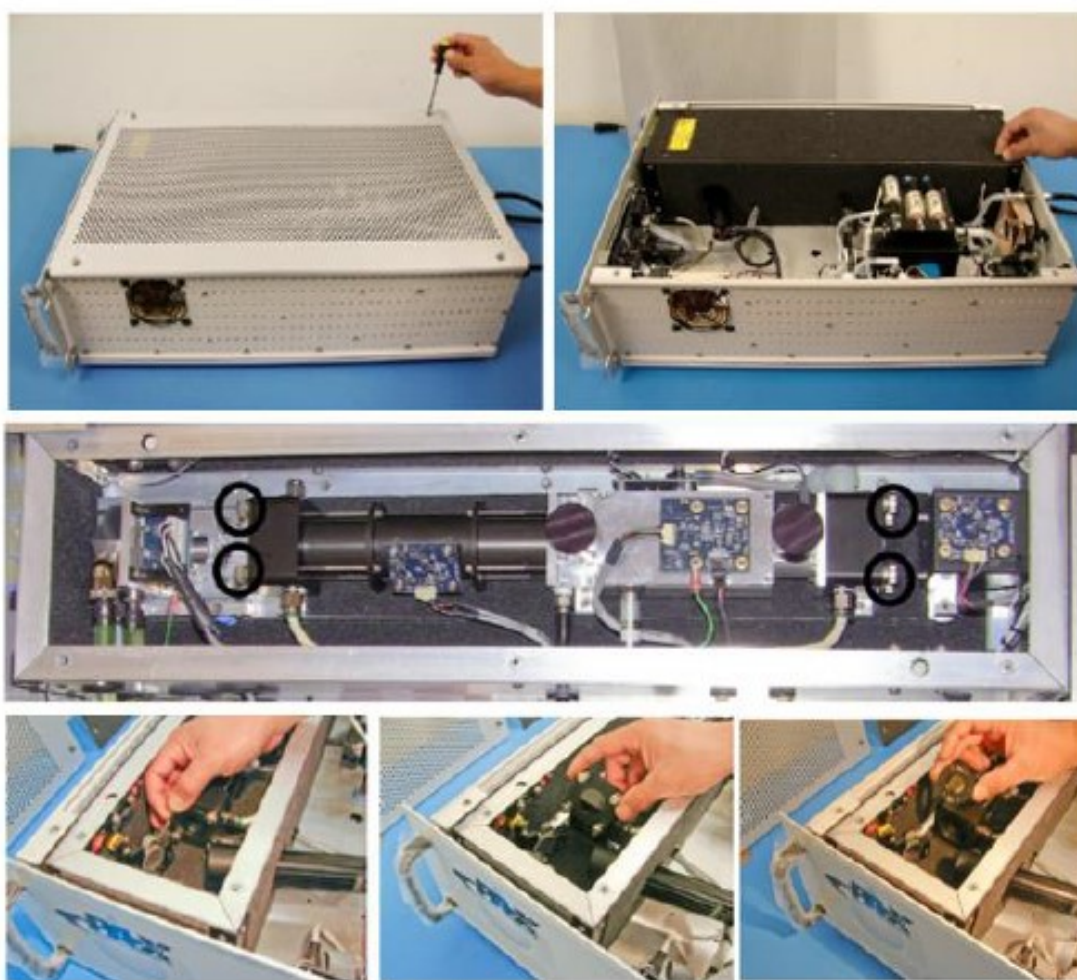


Figure 15. Représentation de la méthode pour enlever les lentilles du PAX.

3. S'assurer d'avoir tout le matériel à portée de la main pour nettoyer les lentilles.

- 3.1. Le matériels requis est des gants de nitriles, de l'acétone, un «Bulb», un «Thermo Scientific Nalgene Forceps Cat. No. 6320-0010 (Blue polypropylene)», puis quelques «Texwipe TX404 Absorbond wiper, DMT part number OP-0155» (présenté à la figure 16).



Figure 16. Représentation (de gauche à droite) d'une «Forcep», de «Texwipe TX404» et d'un «Bulb».

4. Dépoussiérer les lentilles à l'aide du «Bulb».
5. Effectuer le pliage d'un «Texwipe TX404» comme présenté à la figure 17.
- 5.1. S'assurer de mettre assez d'acétone sur le «Texwipe TX404» avant de nettoyer les lentilles.

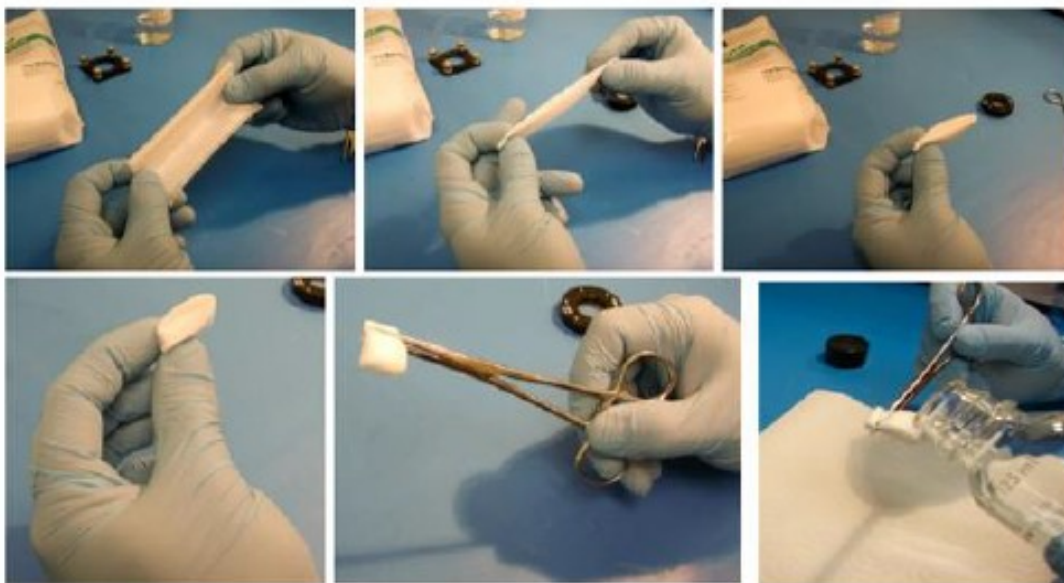


Figure 17. Étape à suivre pour bien plier un «Texwipe TX404» pour le nettoyage.

6. Nettoyer les lentilles de façon très délicate et en effleurant à peine toute la surface de la lentille (comme présentée à la figure 18).

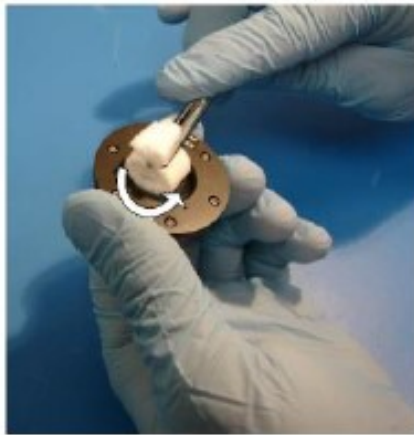


Figure 18. Méthode pour nettoyer une lentille du PAX.

7. Remettre les lentilles à leur position initiale de façon la plus délicate possible.
8. Vérifier de nouveau la puissance laser, comme expliquée à la page 7, afin de confirmer que le nettoyage a été efficace.
9. Pour d'autres informations allez voir la section 6.3 *Cleaning Window Cartridges* page 39 du manuel de l'opérateur du PAX.

Nettoyage des Cyclones

1. Retirer le cyclone délicatement du PAX, en s'assurant de garder toutes les pièces le reliant avec le PAX.
2. Démontez le cyclone au complet afin de récupérer le corps et le réceptacle à poussière (pièces 4 et 5, de la figure 19, du cyclone).

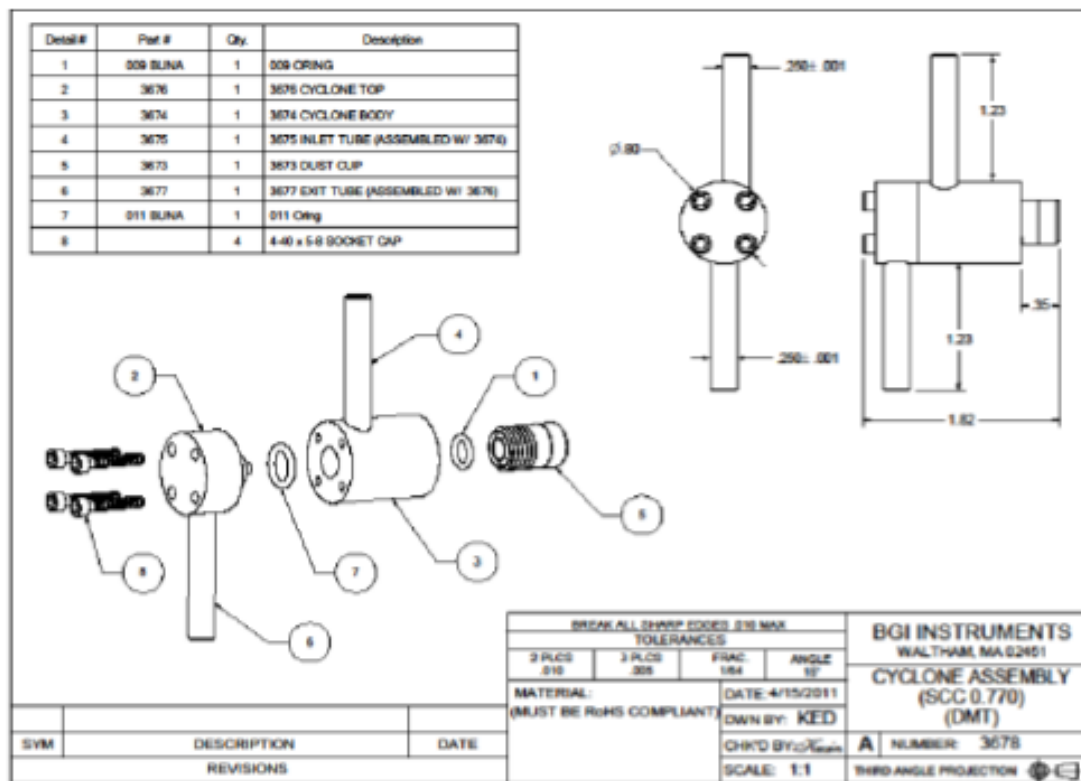


Figure 19. Schéma éclaté d'un cyclone PM₁.

3. Nettoyer préalablement le corps et le réceptacle à poussière du cyclone avec de l'eau Mili Q et des «*Kimwipes KIMTECH*».
 - 3.1. Si cela ne suffit pas pour nettoyer les pièces, les passer au bain ultrasonique, dans l'eau Mili Q, pendant 15-20 minutes avant de refaire l'étape 3.
4. Déposer les pièces nettoyées du cyclone sur une «*Kimwipes*», puis laisser sécher pendant plusieurs heures ou bien jusqu'à tant que les pièces soient complètement sèches.
5. Inspecter les «*O-rings*» avant le rassemblement.
6. Assembler de nouveau le cyclone, puis le remettre sur le PAX comme indiquée par la figure 20.

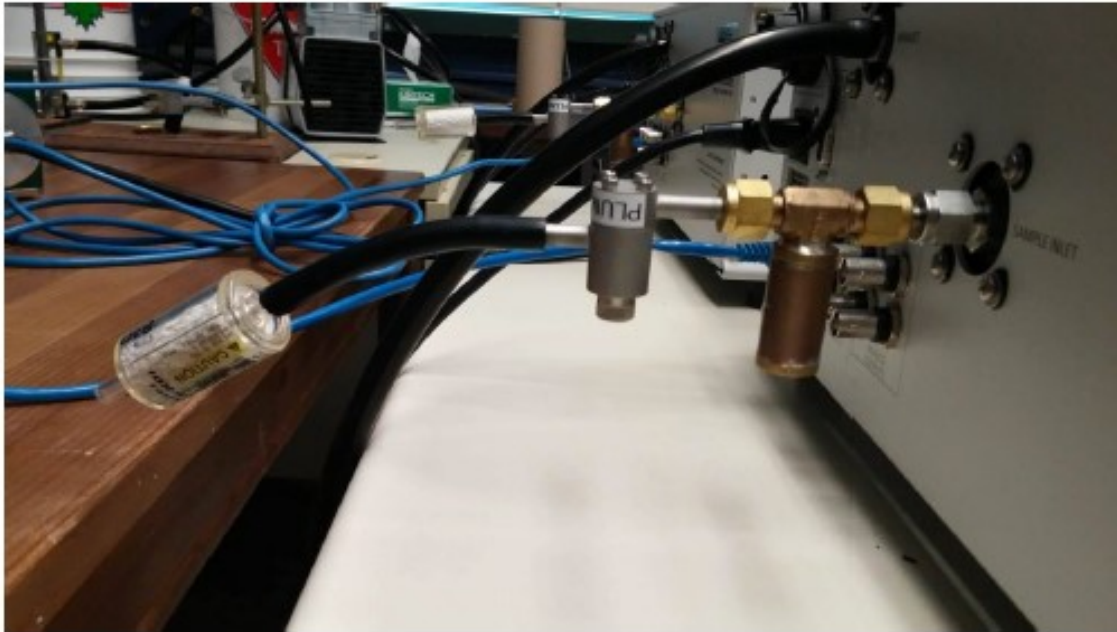


Figure 20. Représentation du branchement du cyclone PM₁.

7. Pour d'autres informations allez voir la section 3.0 *Maintenance* page 6 du manuel de l'opérateur du *PM 2.5 Intel Cyclone (for PAX)*.

Changement du Gel de Silice

1. Retirer le tube contenant le gel de silice (figure 21) du montage fait avec le PAX.



Figure 21. Tube contenant le gel de silice.

2. Mettre le tube en position vertical, puis ouvrir l'un des côtés.
 - 2.1. S'assurer d'avoir un nombre suffisant de contenants en verre pour accueillir le gel de silice.
3. Verser le gel de silice dans des contenants en verre.
 - 3.1. S'assurer qu'il y a la plus grande surface possible qui soit en contact.
 - 3.1.1. Étendre le plus possible le gel de silice dans les contenants.
 - 3.1.2. S'assurer qu'il n'y a pas trop de gel de silice dans les contenants.
 - 3.1.2.1. Il faut juste recouvrir le fond du contenant et non en mettre très épais dans ceux-ci.
4. Mettre le four à 110 °C.
 - 4.1. Il ne faut pas dépasser cette température.
5. Mettre les contenants remplis de gel de silice dans le four à 110 °C, pendant une heure.
6. Fermer le four après une heure et laisser les contenants pendant 3 heures dans le four.
7. Prendre les contenants remplis de gel de silice et transvider le gel de silice dans le tube initial.
 - 7.1. Il est possible de mettre le gel de silice dans son contenant d'origine pour le conserver pour un prochain transfert et prendre directement ce gel de silice pour remettre au plus vite le tube de gel de silice dans le montage.
8. Le gel de silice doit être changé à toutes les semaines lors des périodes de l'année qui sont très humides, ou sinon le gel de silice doit être changé au moment que celui-ci change grandement de couleur.
 - 8.1. Le gel de silice lorsqu'il est utilisé à une couleur bleue, puis devient rougeâtre et ensuite transparent lorsqu'elle a absorbé assez d'humidité.