

Université de Montréal

**Caractérisation *in situ* des propriétés optiques et  
microphysiques des aérosols troposphériques dans  
l'archipel arctique canadien**

par

Andy Vicente-Luis

Département de chimie, Université de Montréal

Faculté des arts et des sciences

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

Décembre 2019

© Andy Vicente-Luis, 2019

Université de Montréal  
Département de chimie, Faculté des arts et des sciences

---

*Ce mémoire intitulé*

**Caractérisation *in situ* des propriétés optiques et microphysiques des  
aérosols troposphériques dans l'archipel arctique canadien**

*Présenté par*

**Andy Vicente-Luis**

*A été évalué par un jury composé des personnes suivantes*

**Kevin Wilkinson**

Président-rapporteur

**Patrick Hayes**

Directeur de recherche

**Jean-François Masson**

Membre du jury

## Résumé

Le réchauffement climatique dans l'Arctique canadien est deux fois plus rapide que la moyenne globale, ce qui accélère la fonte de la banquise et bouleverse radicalement la faune, la flore et les communautés de la région tout entière. Ce réchauffement est causé non seulement par la hausse des émissions de gaz à effet de serre, mais également par des agents de forçage climatique de courte durée comme les aérosols troposphériques. Toutefois, le forçage radiatif des aérosols dans la région polaire est beaucoup moins bien estimé que celui des gaz à effet de serre, notamment le CO<sub>2</sub>, et demeure toujours incertain. Cette grande incertitude résulte principalement de la grande variabilité spatiotemporelle des propriétés chimiques et physiques des aérosols, en plus de la complexité des boucles de rétroaction observées en Arctique. D'ailleurs, les données sur les caractéristiques des aérosols et de leur répartition à travers la région sont très limitées, et ce, plus particulièrement dans le Haut-Arctique canadien.

Pour remédier à ce problème, une série de mesures a été effectuée sur une période de 3 ans (2016-2019) dans le laboratoire de recherche sur l'environnement atmosphérique polaire (PEARL, 80°N 86°O) situé près de la station météorologique d'Eureka, au Nunavut, Canada. La distribution en taille des aérosols a été mesurée en se servant de plusieurs instruments, dont un compteur optique de particules (OPC), un granulomètre de mobilité électrique à balayage (SMPS) et un granulomètre aérodynamique (APS). Les propriétés optiques des aérosols ont été déterminées avec deux extinciomètres photoacoustiques (PAX) qui opèrent respectivement à des longueurs d'onde de 405 et 870 nm.

Les observations réalisées à l'observatoire PEARL démontrent une forte variation saisonnière dans les propriétés optiques et microphysiques des aérosols polaires. Pendant l'hiver et le printemps, l'atmosphère arctique est envahie par une brume sèche d'origine anthropique qui se traduit par une forte augmentation dans la taille, la concentration en nombre et les propriétés optiques extensives des aérosols. Les épisodes de brume arctique commencent généralement en mi-décembre, où des événements de poussières minérales ont aussi été observés, et se terminent en mai où la formation et le grossissement de nouvelles particules s'amorcent. Le début du printemps mesure les concentrations d'aérosol en mode

accumulation les plus élevées durant l'année. Les aérosols les plus sombres qui composent la brume arctique ont été identifiés comme étant de la suie ou du carbone noir transporté dans l'Arctique à partir de l'Eurasie et de l'Alaska. Quelques relations systématiques entre les propriétés optiques et la distribution de taille des aérosols ont également été calculées et révèlent une différence majeure entre les aérosols interagissant avec la lumière à 405 et 870 nm.

**Mots-clés :** Aérosol, Brume arctique, Propriété optique, Distribution de taille, Arctique, Eureka, PAX, SMPS, OPC, APS



## Abstract

Global warming in the Canadian Arctic is twice as fast as the global average, accelerating the melting of sea ice and radically disrupting the fauna, the flora, and the communities of the whole region. Arctic warming is caused not only by rising greenhouse gas emissions, but also by the short-lived climate forcing agents such as tropospheric aerosols. However, aerosol radiative forcing in the polar region is less precisely estimated than that of greenhouse gases, notably CO<sub>2</sub>, and remains highly uncertain. This large uncertainty arises mainly from the high spatiotemporal variability in aerosol chemical and physical properties, in addition to the complexity of the feedback loops observed in the Arctic. Furthermore, datasets on aerosol characteristics and their distribution across the region are very limited, particularly in the Canadian High Arctic.

To address this issue, a series of measurements were conducted over a 3-year period (2016-2019) at the Polar Atmospheric Environment Research Laboratory (PEARL, 80°N 86°W) near Eureka weather station, in Nunavut, Canada. Aerosol size distribution was measured using several instruments including an Optical Particle Counter (OPC), a Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS), an Aerodynamic Particle Sizer (APS). Aerosol optical properties were determined by two Photoacoustic Extinctionmeters (PAXs) which operate at wavelengths of 405 nm and 870 nm, respectively.

Observations made at the PEARL observatory show a strong seasonal variation in the optical and microphysical properties of polar aerosols. In the winter and spring, the Arctic atmosphere is impacted by an anthropogenic haze that results in a sharp increase in aerosol size, number concentration, and optical properties. Arctic haze episodes typically occur in mid-December, when mineral dust events have also been observed, and end in May when formation and growth of new particles begin. Early spring exhibits the highest accumulation-mode aerosol concentrations during the year. The darkest Arctic haze aerosols have been identified as soot or black carbon transported into the Arctic from Eurasia and Alaska. Some systematic relationships among aerosol optical properties and size distribution have also been calculated and reveal a major difference between aerosols interacting with light at 405 nm and 870 nm.

**Keywords** : Aerosol, Arctic haze, Optical properties, Size distribution, Arctic, Eureka, PAX, SMPS, OPC, APS

# Table des matières

Résumé.....	iii
Abstract.....	v
Table des matières.....	vii
Liste des tableaux.....	x
Liste des figures .....	xi
Liste des abréviations.....	xv
Remerciements.....	xxi
Chapitre 1 - Introduction.....	1
1.1.    Aérosols atmosphériques .....	2
1.1.1.    Origines et compositions.....	3
1.1.2.    Transformation et distribution granulométrique.....	6
1.2.    Impact des aérosols sur la santé et la qualité de l'air.....	10
1.3.    Impact sur le climat et l'atmosphère.....	13
1.3.1.    Effet radiatif direct.....	13
1.3.2.    Effet indirect .....	16
1.3.3.    Carbone noir et l'effet semi-direct.....	18
1.4.    Pollution atmosphérique en Arctique.....	22
1.4.1.    Réchauffement climatique dans l'Arctique .....	22
1.4.2.    Brume sèche arctique.....	26
1.4.3.    Transport des aérosols en Arctique.....	29
1.4.4.    Eureka .....	34
1.5.    Instrumentation .....	39
1.5.1. <i>Optical Particle Counter</i> (OPC).....	40
1.5.2. <i>Aerodynamic Particle Sizer</i> (APS).....	42
1.5.3. <i>Scanning Mobility Particle Sizer</i> (SMPS) .....	46
1.5.4. <i>Photoacoustic Extinctionmeter</i> (PAX) .....	50

1.6.	Propriétés optiques des aérosols .....	53
1.6.1.	Extinction, diffusion et absorption de la lumière par les aérosols .....	53
1.6.2.	Albédo de diffusion simple, exposants d'Ångström et indice de réfraction.....	55
1.6.3.	Théorie de Mie .....	58
1.7.	Objectifs .....	64
1.8.	Références (Chapitre 1) .....	66
Chapitre 2 - <i>In situ</i> optical and microphysical properties of tropospheric aerosols in the Canadian High Arctic from 2016 to 2019.....		85
2.1.	Préface.....	86
2.2.	Abstract.....	88
2.3.	Introduction.....	90
2.4.	Material and methods.....	95
2.4.1.	Site description.....	95
2.4.2.	Instrumentation .....	95
2.4.3.	Data processing.....	97
2.4.4.	Backward air mass trajectories .....	99
2.5.	Results and Discussion .....	101
2.5.1.	Aerosol microphysical properties .....	101
2.5.2.	Temporal variation in aerosol extensive properties .....	102
2.5.3.	Relationship between aerosol optical and physical measurements.....	105
2.5.4.	Variability of intensive aerosol optical properties .....	106
2.5.4.1.	Single Scattering Albedo .....	106
2.5.4.2.	Scattering and Absorption Ångström Exponents.....	108
2.5.4.3.	Real and Imaginary Index of Refraction.....	111
2.5.5.	Systematic relationships among aerosol optical properties .....	112
2.5.5.1.	General description .....	113
2.5.5.2.	Interpretation of the relationships between optical parameters .....	117
2.5.6.	Aerosol sources and transport.....	119
2.6.	Conclusion .....	121
2.7.	Supporting information.....	124

2.7.1.	PAX data.....	124
2.7.2.	Additional aerosol inlet description.....	125
2.7.3.	Refractive index retrieval.....	126
2.7.4.	Supplemental tables.....	129
2.7.5.	Supplemental figures.....	134
2.8.	References (Chapitre 2).....	142
Chapitre 3 - Conclusion.....		157
3.1.	Synthèse.....	158
3.2.	Perspectives.....	160
3.3.	Références (Chapitre 3).....	164
Annexe.....		i
I. Traitement des données de l'APS.....		ii
II. Calcul de SSA, SAE et AAE.....		ix
	<i>PAX_CorrelationGraphs.ipf</i> .....	x
	<i>PAX_SSA+AAE+SAE.ipf</i> .....	xiv
	<i>PAX_Average_Bsca+Babs.ipf</i> .....	xvii
	<i>PAX_QC_SSA+AAE+SAE.ipf</i> .....	xix
	<i>PAX_SSA+AAE+SAE_V2.1.ipf</i> .....	xxii
	<i>PAX_Linear_regression.ipf</i> .....	xxv
	<i>PAX_SSA+AAE+SAE_V3.ipf</i> .....	xxix
III. Calcul de l'indice de réfraction complexe.....		xxxii
IV. Corrélation entre la diffusion et les concentrations des aérosols.....		xxxv
V. Distribution mensuelle en nombre des aérosols mesurés par le SMPS.....		liv
VI. Statistiques sur les propriétés des aérosols.....		lvii
	<i>PAX_SSA+AAE+SAE_seasonal.ipf</i> .....	lviii
	<i>SMPS OPC APS TotalConc_seasonal.ipf</i> .....	lxiv
VII. Différence de température entre les stations PEARL et Eureka.....		lxxiv
	<i>LoadTempFiles_WS1619.ipf</i> .....	lxxv
	<i>Average_Temp_gradient_WS1619.ipf</i> .....	lxxix

## Liste des tableaux

<b>Table 2-1</b> Statistics of aerosol optical properties for the winter and spring periods based on hourly averaged data from 2016 to 2019. The averages are expressed as arithmetic means, and SE represent the standard errors. ....	104
<b>Table 2-2</b> List of all Arctic haze events observed at the PEARL Ridge Lab during winter and spring from 2016 to 2019.....	129
<b>Table 2-3</b> The real ( $n$ ) and imaginary ( $k$ ) parts of the complex refractive indices retrieved from aerosol size distributions with an upper size cut of 5 or 2 $\mu\text{m}$ and using a wavelength of 405 nm. ....	133

## Liste des figures

<b>Figure 1-1</b> Morphologie de différents types d'aérosols mesurée à l'aide d'un microscope électronique à balayage. De gauche à droite : cendres volcaniques, pollen, sel marin et suie. ..	2
<b>Figure 1-2</b> Concentration en masse ( $\mu\text{g m}^3$ ) de 7 principaux types d'aérosol pour des particules avec un diamètre inférieur à 10 $\mu\text{m}$ provenant de divers sites ruraux, urbains et marins à travers le monde. Les données se basent au moins sur une année complète. Les diagrammes en boîte illustrent la médiane, le 25 <sup>e</sup> et 75 <sup>e</sup> percentiles (boîtes), et le 10 <sup>e</sup> et 90 <sup>e</sup> percentiles (moustaches) pour chaque type d'aérosol. ....	4
<b>Figure 1-3</b> Schéma résumant le cycle de vie des aérosols atmosphériques, de la formation au dépôt des aérosols. ....	6
<b>Figure 1-4</b> Les distributions de la taille en nombre (trait bleu continu) et en masse (trait rouge pointillé) d'une même population d'aérosols. Les différents processus dynamiques les plus importants qui affectent le nombre et la masse totaux des aérosols sont décrit brièvement dans les encadrés. ....	8
<b>Figure 1-5</b> Représentation schématique des dépôts des particules grossières (inhalables), fines (thoraciques), et ultrafines ou nanoscopiques (respirables) dans le système respiratoire de l'humain. ....	11
<b>Figure 1-6</b> Moyenne globale des forçages radiatifs estimés pour l'année 2011 par rapport à 1750 pour les gaz à effet de serre, les aérosols atmosphériques et autres gaz avec leur niveau de confiance scientifique qui est noté F (faible), M (moyen), E (élevé), et TE (très élevé). ....	14
<b>Figure 1-7</b> Représentation schématique des différents effets indirects des aérosols. Les points noirs représentent les particules d'aérosols et les cercles blancs correspondent aux gouttelettes nuageuses. Les traits noirs représentent le rayonnement solaire incident ou réfléchi par les nuages. ....	17
<b>Figure 1-8</b> Ensemble des mécanismes liés à l'effet semi-direct des aérosols absorbants. ....	20
<b>Figure 1-9</b> Carte de l'Arctique et de ses environs avec le cercle arctique en tirets noirs. ....	23
<b>Figure 1-10</b> Tendances linéaires de la température annuelle moyenne de l'air à la surface pour la période 1990 – 2019 d'après une analyse de température par le Goddard Institute for Space Sciences de la National Aeronautics and Space Administration (NASA-GISS). ....	24

<b>Figure 1-11</b> Couches de brume arctique observées au nord de l'Alaska à bord d'un avion de recherche de la National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) durant la campagne ARCPAC 2008. ....	28
<b>Figure 1-12</b> Sensibilité potentielle aux émissions (PES) de la masse d'air, qui passe au moins 5 jours dans l'Arctique, intégrée au cours des 30 derniers jours avant son arrivée en Arctique en hiver (à gauche) et en été (à droite). PES est appliquée pour des particules qui atteignent une altitude minimale inférieure à 1000 m. Les valeurs de PES sont exprimées en ps/kg et sont proportionnelles au temps de résidence des particules. ....	30
<b>Figure 1-13</b> Schéma démontrant les principales voies de transport et les mécanismes d'élimination des aérosols dans l'Arctique en hiver-printemps (à gauche) et en été (à droite). Les voies de transport sont représentées sous forme de flèches brunes où les lignes pointillées indiquent un faible transport. Les dépôts humides sont marqués par des flèches bleues. Les phénomènes météorologiques sont démontrés avec des lignes noires. Les processus radiatifs à longues longueurs d'onde sont représentés en rouge, tandis que ceux à courtes longueurs d'onde sont en jaune. ....	32
<b>Figure 1-14</b> Carte de l'archipel arctique canadien montrant le site d'Eureka (a) et ses environs (b).....	35
<b>Figure 1-15</b> Photo de la façade nord du bâtiment principal du laboratoire de recherche atmosphérique en environnement polaire (PEARL Ridge Lab). ....	37
<b>Figure 1-16</b> Composantes de base d'un compteur optique de particules (OPC). ....	41
<b>Figure 1-17</b> Diagramme d'un granulomètre aérodynamique (APS) et de ses composantes. ...	43
<b>Figure 1-18</b> Diagramme d'un granulomètre de mobilité électrique à balayage (SMPS) et de ses composantes.....	48
<b>Figure 1-19</b> Diagramme illustrant les cellules de diffusion (zone pointillée bleue) et d'absorption (zone pointillée verte) dans l'extinctionmètre photoacoustique (PAX). ....	51
<b>Figure 1-20</b> Illustration du phénomène d'extinction avec trois solutions aqueuses. La boîte à Petri à droite contient une suspension d'encre noire, celle à gauche contient une suspension de lait et, finalement, celle du haut ne contient que de l'eau. ....	55
<b>Figure 2-1</b> Monthly median particle number size distributions for the SMPS from December 2016 to November 2019. The whiskers show the 20-80th percentile of the measurements. .	101



**Figure 2-2** Daily mean scattering ( $B_{sca}$ ) (blue line) and absorption ( $B_{abs}$ ) (red line) coefficients at wavelengths of 405 and 870 nm measured by the two PAX instruments. .... 103

**Figure 2-3** Correlation between scattering coefficient at wavelengths of 405 (blue) and 870 (red) nm and number concentration in the diameter range of >50 nm, >100 nm, >200 nm, >300 nm, >500 nm, and 10 nm - 20  $\mu$ m for winter-spring from 2016 to 2018. .... 105

**Figure 2-4** Average values of SSA at wavelengths of 405 (blue circle) and 870 nm (red circle) calculated for different Arctic haze events during each month for 2016-2019. Error bars express the standard error. The period of each event is summarized in Table 2-2. .... 107

**Figure 2-5** SAE (green circle) and AAE (black square) values for the 405 and 870 nm wavelength pair calculated for different Arctic haze events during each month for 2016-2019. Error bars express the standard deviation. Ångström exponents are obtained from the slope of a linear regression analysis of  $B_{sca}$  or  $B_{abs}$ . .... 109

**Figure 2-6** Real ( $n$  : blue square) and imaginary ( $k$  : blue triangle) refractive indices at a wavelength of 405 nm calculated for different Arctic haze events during each month for 2016-2019. .... 111

**Figure 2-7** Systematic relationships between scattering and absorption coefficients at 405 and 870 nm for all Arctic haze events from 2016 to 2019. Error bars express the standard error of the mean. .... 113

**Figure 2-8** Systematic relationships between scattering / absorption coefficients and single scattering albedo at 405 and 870 nm for all Arctic haze events from 2016 to 2019. Error bars express the standard error of the mean. .... 114

**Figure 2-9** Systematic relationships between the real part and imaginary part of the complex refractive index and the scattering and absorption coefficients at 405 nm for selected Arctic haze events from 2016 to 2019. Error bars express the standard error of the mean. .... 115

**Figure 2-10** Systematic relationships between scattering coefficients, single scattering albedo, and scattering Ångström exponent at 405 and 870 nm for all Arctic haze events from 2016 to 2019. Error bars express the standard error of the mean. .... 116

**Figure 2-11** Systematic relationships between single scattering albedo, scattering Ångström exponent, and the real and imaginary parts of the complex refractive index at 405 nm for all Arctic haze events from 2016 to 2019. Error bars express the standard error of the mean. .... 117

**Figure 2-12** Average of 10-day back-trajectories during selected Arctic haze episodes (2016-2019) grouped into categories A (right top), B (left bottom), and C (right bottom) based on the SSA vs *Babs* plot (left top) from Figure 2-8. The color represents mean surface sensitivities (s). The red dots indicate the location of the PEARL Ridge Lab. .... 120

**Figure 2-13** Daily mean temperature (°C) measured at Eureka Weather Station (blue line) and PEARL Ridge Lab (red line). .... 134

**Figure 2-14** Correlation between calculated (APS) and measured (PAX) mean scattering coefficients at wavelengths of 405 and 870 nm for 1, 2, 3, and 4.5 μm polystyrene latex spheres (PSL). The deviation from a slope of 1 for the largest particle sizes is due to particle transmission losses within the PAX instruments. .... 135

**Figure 2-15** Inlet particle transmission efficiency for the OPC (top), and the APS (bottom). .... 136

**Figure 2-16** Inlet particle transmission efficiency for the PAX405 (top) and PAX870 (middle) for the first two years of measurements, and the two PAXs (bottom) for the last year. .... 137

**Figure 2-17** Correlation between OPC and SMPS number concentration in the approximate size range of 300 - 500 nm. .... 138

**Figure 2-18** Correlation between APS and SMPS number concentration in the approximate size range of 400 - 500 nm. .... 139

**Figure 2-19** Averaged temperature gradient (°C) between the PEARL Ridge Lab and Eureka Weather Station (i.e.  $\Delta T = T(\text{Ridge Lab}) - T(\text{Eureka})$ ) for different Arctic haze events during each month for 2016-2019. Error bars express the standard error of the mean. .... 139

**Figure 2-20** Example of Arctic haze event observed in December 2016 at the PEARL Ridge Lab. Hourly averaged scattering (blue line) and absorption (red line) coefficients at wavelengths of 405 (top) and 870 nm (middle), as well as the aerosol size distribution (bottom) from the SMPS instrument for the event. Dashed black lines indicate when the event starts and ends. .... 140

**Figure 2-21** Average hourly scattering (blue circle) and absorption (red circle) coefficients at wavelengths of 405 (top) and 870 nm (bottom) calculated for different Arctic haze events for 2016-2019. Error bars express the standard error of the mean. .... 141

## Liste des abréviations

AAE : Exposant d'Ångström d'absorption (*Absorption Ångström Exponent*)

AE : Exposant d'Ångström (*Ångström Exponent*)

AMS : Spectromètre de masse d'aérosols (*Aerosol Mass Spectrometer*)

APR : Avril (*April*)

APS : Granulomètre aérodynamique (*Aerodynamic Particle Sizer*)

a.s.l. : Au-dessus du niveau de la mer (*Above sea level*)

AStrO : Observatoire arctique d'ozone stratosphérique (*Arctic Stratospheric Ozone Observatory*)

ATOFMS : Spectromètre de masse en temps de vol d'aérosols (*Aerosol Time-Of-Flight Mass Spectrometer*)

AUG : Août (*August*)

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

$B_{\text{ext}}$  : Coefficient d'extinction de la lumière

$B_{\text{sca}}$  : Coefficient de diffusion de la lumière

BC : Carbone noir (*Black carbon*)

BrC : Carbone brun (*Brown carbon*)

CANDAC : Réseau canadien pour la détection des changements atmosphériques (*Canadian Network for Detection of Atmospheric Change*)

cm : Centimètre

CO : Colorado

COV : Composés organiques volatils

CPC : Compteur de particules à noyaux de condensation (*Condensation Particle Counter*)

$D_a$  : Diamètre aérodynamique

$D_m$  : Diamètre de mobilité électrique

$D_o$  : Diamètre optique

$D_p$  : Diamètre physique

DEC : Décembre

DMA : Analyseur différentiel de mobilité électrique (*Differential Mobility Analyzer*)

DMS : Diméthylsulfure

dN/dlogDp : Concentration en nombre normalisée

EAE : Exposant d'Ångström d'extinction (*Extinction Ångström Exponent*)

ECCC : Environnement et Changement climatique Canada (*Environment and Climate Change Canada*)

e.g. : *Exempli gratia* (Par exemple)

etc. : Et cætera

FEB : Février (*February*)

FLEXPART : Modèle lagrangien de dispersion de particules (*FLEXible PARTicle Lagrangian dispersion model*)

g : Gramme

GC-MS : Chromatographie gazeuse couplée à la spectrométrie de masse (*Gas Chromatography – Mass Spectrometry*)

GEOS-Chem : *Goddard Earth Observing System - Chemistry model*

GIEC : Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat

h : Heure

Hz : Hertz

ID : Diamètre interne

i.e. : *Id est* (c'est-à-dire)

IR : Rayons infrarouges

JAN : Janvier

JUL : Juillet (*July*)

JUN : Juin (*June*)

k : Composante imaginaire de l'indice de réfraction complexe

K : Constante mathématique

kg : Kilogramme

km : Kilomètre

L : Litre

m : Mètre (si précédé d'un chiffre ou d'un nombre) ou indice de réfraction complexe

MA : Massachusetts

MAR : Mars

MI : Michigan

min : Minute  
mm : Millimètre  
Mm : Mégamètre  
MN : Minnesota  
MO : Missouri  
MSA : Acide méthanesulfonique (*Methanesulfonic Acid*)  
n : Composante réelle de l'indice de réfraction complexe  
N : Concentration en nombre ( $\text{cm}^{-3}$ )  
NASA-GISS : Institut Goddard des sciences de l'espace de l'agence spatiale américaine (*National Aeronautics and Space Administration - Goddard Institute for Space Sciences*)  
NCEP-CFS : Centres nationaux de prévision environnementale – Système de prévisions climatiques (*National Centers for Environmental Prediction Climate Forecast System*)  
NETCARE : Réseau sur le climat et les aérosols : Dissiper les principales incertitudes liées aux régions canadiennes éloignées (*Network on Climate and Aerosols: Addressing Key Uncertainties in Remote Canadian Environments*)  
NH : New Hampshire  
nm : Nanomètre  
NOAA : Agence américaine d'observation océanique et atmosphérique (*National Oceanic and Atmospheric Administration*)  
NOV : Novembre  
NPF : Formation de nouvelle particule (*New particle formation*)  
NSIDC : Centre national américain de données sur la neige et de la glace (*National Snow and Ice Data Center*)  
NY : New York  
OA : Aérosol organique (*Organic aerosol*)  
OCT : Octobre  
OD : Diamètre externe  
OMS : Organisation mondiale de la santé  
ØPAL : Laboratoire auxiliaire à zéro altitude de PEARL (*Zero Altitude PEARL Auxiliary Laboratory*)  
OPC : Compteur optique de particules (*Optical Particle Counter*)

OR : Oregon

PAX : Extinctionmètre photoacoustique (*Photoacoustic Extinctionmeter*)

PAX405 : PAX fonctionnant à une longueur d'onde de 405 nm

PAX870 : PAX fonctionnant à une longueur d'onde de 870 nm

PEARL : Laboratoire de recherche atmosphérique en environnement polaire (*Polar Environment Atmospheric Research Laboratory*)

PES : Sensibilité potentielle aux émissions

p. ex. : Par exemple

PM<sub>2.5</sub> : Matière particulaire (*Particulate matter*) de taille inférieure à 2,5 µm

PM<sub>4.5</sub> : Matière particulaire (*Particulate matter*) de taille inférieure à 4,5 µm

PM<sub>10</sub> : Matière particulaire (*Particulate matter*) de taille inférieure à 10 µm

ps : Picoseconde

PSL : Suspension aqueuse de microsphères de polystyrène (*polystyrene latex spheres*)

Q<sub>abs</sub> : Facteur d'absorption de la lumière

Q<sub>sca</sub> : Facteur de diffusion de la lumière

R<sup>2</sup> : Coefficient de corrélation

RH : Humidité relative (*Relative humidity*)

s : Seconde

SAE : Exposant d'Ångström de diffusion (*Scattering Ångström Exponent*)

SAFIRE : *Surface and Atmospheric Flux, Irradiance and Radiation Extension*

SE : Erreur type (*Standard error*)

SEP : Septembre

SMPS : Granulomètre de mobilité électrique à balayage (*Scanning Mobility Particle Sizer*)

SP2 : Photomètre monoparticulaire de suie (*Single Particle Soot Photometer*)

SSA : Albédo de diffusion simple (*Single Scattering Albedo*)

tg : Téra gramme

TOF : Temps de vol (*Time-Of-Flight*)

UFP : Particule ultrafine (*Ultrafine particle*)

µm : Micromètre

µs : Microseconde

USA : États-Unis d'Amérique (*United States of America*)

UTC : Temps universel coordonné (*Coordinated universal time*)

UV : Rayons ultraviolets

vs : Versus

w : Masse

W : Watt

$\Delta$  : Différence entre deux grandeurs

$\rho$  : Densité

$\lambda$  : Longueur d'onde

$^{\circ}$  : Degré d'angle

$^{\circ}\text{C}$  : Degré Celsius

$^{\circ}\text{N}$  : Nord

$^{\circ}\text{O}$  : Ouest

$^{\circ}\text{W}$  : Ouest (*West*)

*À la mémoire de mon grand-père et de ma tante*



## Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier mon directeur de recherche, Patrick Hayes, de m'avoir accepté dans son groupe de recherche et qui m'a fait partager ses brillantes intuitions. Qu'il soit aussi remercié pour m'avoir fait confiance tout au long de mon parcours académique, puis pour m'avoir guidé, encouragé, conseillé, fait beaucoup voyager au cours des dernières années tout en me laissant une grande liberté.

Ce travail n'aurait pu être mené à bien sans la disponibilité et l'accueil chaleureux que m'ont témoigné tous les membres de mon groupe de recherche. Je suis très reconnaissant envers ma collègue et mentor, Samantha Tremblay, pour sa gentillesse, sa patience, sa grande disponibilité et surtout ces conseils judicieux qui ont contribué à alimenter ma réflexion. Elle a partagé ses connaissances et ses expériences dans le domaine de la recherche et du travail sur le terrain, tout en m'accordant sa confiance et une large indépendance dans l'exécution de mes tâches. Un grand merci également à Jacob Sommers pour avoir eu la patience de répondre à mes innombrables questions sur le fonctionnement du logiciel de traitement de données Igor Pro et la programmation. Je voudrais exprimer ma reconnaissance à mes anciens collègues Prettiny Ma et Jill Bachelder qui m'ont apporté leur soutien moral et intellectuel tout au long de ma démarche.

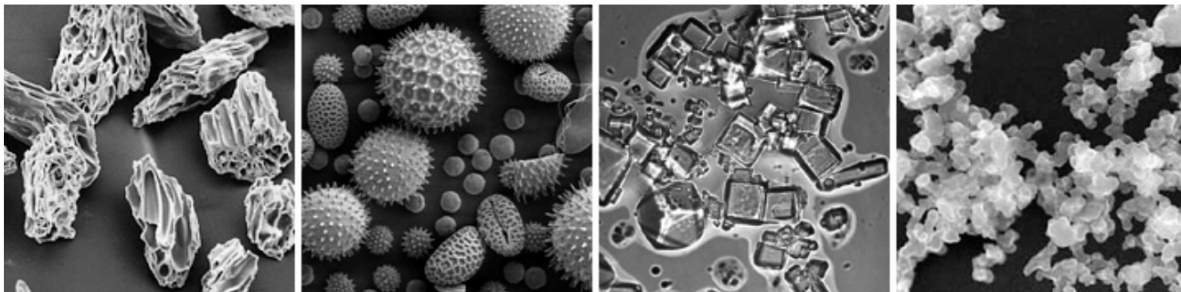
Je remercie en particulier Pierre Fogal qui m'a fourni les outils nécessaires à la réussite de ma recherche dans le Grand Nord canadien et les conseils stimulants que j'ai eu l'honneur de recevoir de sa part. J'adresse tous mes remerciements à John Gallagher, Peter McGovern et à Andrew Hall qui ont su m'apporter leurs conseils, leur aide et leur soutien logistique inestimable. J'aimerais aussi exprimer ma gratitude à tout le personnel de la station météorologique d'Eureka pour l'hospitalité dont ils ont fait preuve envers moi lors des trois séjours que j'ai effectués en Arctique et pour m'avoir donné l'occasion extraordinaire de réaliser mon travail sur le terrain.

Au terme de ce parcours, je remercie enfin celles et ceux qui me sont chers et qui ont toujours été là pour moi. Je suis surtout redevable à ma mère, Maria Vicente, pour son énorme soutien moral et matériel et sa confiance indéfectible dans mes choix de tous les jours.

# **Chapitre 1 - Introduction**

### 1.1. Aérosols atmosphériques

L'atmosphère de notre planète n'est pas uniquement constituée de gaz, dont les plus importants sont de loin l'azote et l'oxygène, mais elle contient également des quantités significatives de matière condensée en suspension dans l'air sous forme de particules liquides ou solides appelées plus couramment les aérosols. Bien que souvent invisibles à l'œil nu, à cause de leur taille microscopique, les aérosols sont toujours présents dans l'atmosphère autant dans l'air troposphérique (de la surface à une dizaine de kilomètres d'altitude) que dans l'air stratosphérique (jusqu'à une cinquantaine de kilomètres d'altitude).<sup>1</sup> Les nuages que l'on observe quotidiennement dans le ciel sont, au sens large, un exemple typique d'aérosols dans l'atmosphère. Toutefois, en sciences atmosphériques, il est habituel de distinguer les aérosols atmosphériques des particules nuageuses et des hydrométéores qui sont considérés comme un phénomène à part. Les particules nuageuses sont généralement plus grosses que les particules d'aérosol et se composent principalement de gouttelettes d'eau et de cristaux de glace.<sup>2</sup> Les aérosols atmosphériques seront donc définis tout au long de cet ouvrage comme un mélange complexe et dynamique de particules solides ou liquides qui sont en suspension dans l'atmosphère terrestre, à l'exception des nuages et de tous les hydrométéores. Par exemple, les gouttelettes d'eau, les cristaux de glace, les gouttes de pluie, les grêlons et les flocons de neige ne sont pas par définition des aérosols.<sup>3</sup>



**Figure 1-1 Morphologie de différents types d'aérosols mesurée à l'aide d'un microscope électronique à balayage. De gauche à droite : cendres volcaniques, pollen, sel marin et suie.**

(Micrographies tirées de *Earth Observatory*, NASA<sup>4</sup>)

### 1.1.1. Origines et compositions

Les aérosols atmosphériques sont des constituants majeurs de l'atmosphère terrestre au même titre que les gaz. La concentration de ces aérosols est néanmoins extrêmement variable dans l'espace et dans le temps. Il va de même pour leurs propriétés physico-chimiques comme la distribution de taille, la morphologie, la composition chimique et optique (Figure 1-1). Seulement dans la troposphère, les concentrations totales en masse et en nombre des particules varient respectivement entre 1-100  $\mu\text{g m}^{-3}$  et  $10^2 - 10^5 \text{ cm}^{-3}$ .<sup>5-6</sup> L'importante diversité du nombre d'aérosols et de leurs propriétés est essentiellement due à la très grande hétérogénéité des sources d'aérosols et de leur durée de vie relativement courte.<sup>3</sup> Les particules d'aérosols atmosphériques proviennent à la fois de sources naturelles et anthropiques et peuvent être formées selon deux mécanismes différents. Les aérosols primaires sont directement émis dans l'atmosphère sous forme particulaire à partir des sources d'émission. La plupart du temps, ces aérosols sont émis par des processus naturels comme les feux de forêt, l'érosion des sols, les embruns océaniques, les éruptions volcaniques ou du matériel biogénique relâché dans l'atmosphère (pollen, spores, microorganismes, fragments d'animaux et de plantes ...). D'autres proviennent plutôt des activités humaines qui sont largement dominées par la combustion de combustibles fossiles (pétrole, charbon et tourbe) et de biomasse (déchets d'animaux, bois, feux de végétation). Les émissions issues du transport maritime, aérien et automobile, du chauffage et des activités industrielles sont parmi les sources les plus importantes d'aérosols anthropogéniques primaires.<sup>1, 7-8</sup>

Les aérosols secondaires sont quant à eux générés au sein même de l'atmosphère par un processus de conversion gaz-particule dans laquelle les vapeurs condensables, appelés précurseurs d'aérosols, conduisent soit à la nucléation de nouvelles particules, soit au grossissement par condensation de particules existantes. Ces espèces à l'état gazeux subissent un certain nombre de transformations chimiques (p. ex. oxydation ou réaction radicalaire) avant de pouvoir se condenser.<sup>7-8</sup> À l'échelle mondiale, les sources naturelles d'aérosols primaires et secondaires prédominent sur les sources anthropogéniques et elles sont bien réparties sur l'ensemble du globe. Les sources anthropogéniques contribuent un peu moins que 10 à 50% des émissions mondiales d'aérosols primaires et secondaires, mais elles sont davantage concentrées dans les régions densément peuplées. Plus particulièrement dans ces

régions urbaines, les émissions produites par l'activité humaine peuvent alors largement excéder celles provenant des sources naturelles.<sup>1</sup>

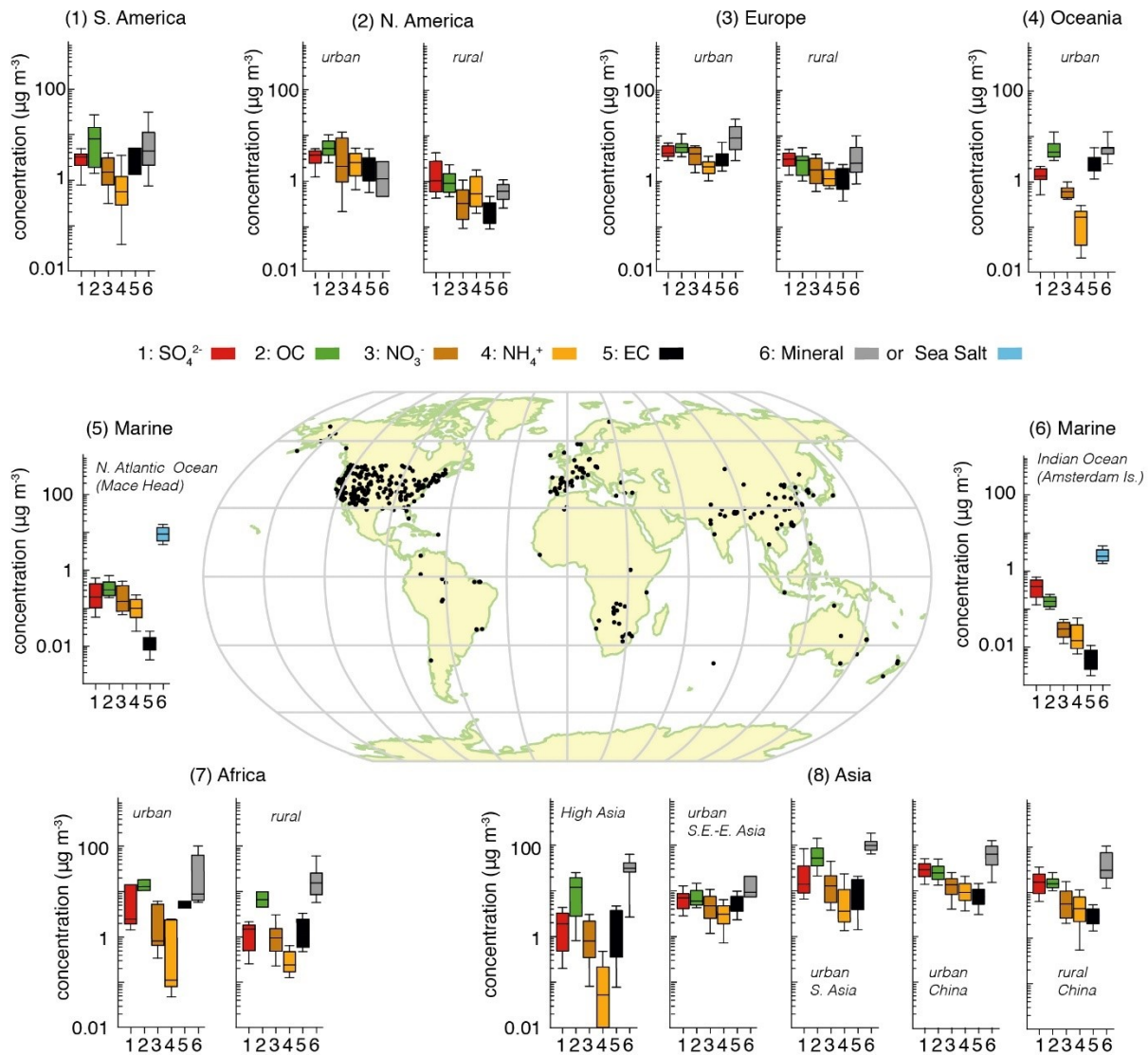


Figure 1-2 Concentration en masse ( $\mu\text{g m}^{-3}$ ) de 7 principaux types d'aérosol pour des particules avec un diamètre inférieur à  $10 \mu\text{m}$  provenant de divers sites ruraux, urbains et marins à travers le monde. Les données se basent au moins sur une année complète. Les diagrammes en boîte illustrent la médiane, le 25<sup>e</sup> et 75<sup>e</sup> percentiles (boîtes), et le 10<sup>e</sup> et 90<sup>e</sup> percentiles (moustaches) pour chaque type d'aérosol.

(Figure tirée de Boucher et al. (2013)<sup>9</sup>)

La complexité des processus d'émission et de formation des aérosols entraîne nécessairement une large variété de compositions chimiques, de formes et de structures telles qu'illustrées à la Figure 1-2. En règle générale, les aérosols se composent majoritairement d'espèces inorganiques (p. ex. sulfate, nitrate, ammonium, sel marin), d'espèces organiques,

de carbone noir, d'espèces minérales (surtout de la poussière désertique) et de particules d'aérosols biogéniques primaires (PABPs). Les poussières minérales, le sel marin, le carbone noir et les PABPs sont introduits dans l'atmosphère sous forme d'aérosols primaires, tandis que le sulfate, le nitrate et l'ammonium sont principalement issus de la formation d'aérosols secondaires. Les aérosols organiques primaires et secondaires proviennent à la fois de sources naturelles et anthropiques. Le carbone noir est un composé particulièrement riche en carbone et il est produit par la combustion incomplète des combustibles fossiles et de la biomasse. De nos jours, la majorité du carbone noir de même que le sulfate, le nitrate et l'ammonium sont issus des sources anthropiques alors qu'une grande partie de la poussière minérale, du sel marin et des PABP sont surtout d'origine naturelle.<sup>7, 10</sup> L'abondance relative de chacun des composants chimiques peut toutefois varier d'un ordre de grandeur ou plus dépendamment du type d'environnement (p. ex. rural vs urbain), des conditions météorologiques (p. ex. les saisons), des fractions granulométriques et du temps.<sup>6</sup>

Au-dessus des océans et des mers, les aérosols marins sont généralement composés de sel marin et de matière organique primaire générée par l'activité biologique à la surface des océans.<sup>11</sup> L'abondance des particules de sel de mer est la deuxième la plus importante derrière la poussière minérale dans la troposphère. Le sel de mer est généralement dominant au-dessus de la surface des océans dans les régions les plus reculées de notre planète avec une fraction en masse des aérosols pouvant atteindre 50 à 70%.<sup>7, 10, 12</sup> Certaines estimations démontrent que les rejets mondiaux d'aérosols d'origine marine, qui se sont élevés à 3300 Tg en l'an 2000, dépassent les rejets totaux de tous les aérosols d'origine naturelle et anthropique.<sup>12</sup> En revanche, sur la masse continentale, les aérosols continentaux peuvent être constitués de poussière minérale ou de sels inorganiques mélangés avec de la matière organique de nature biogénique ou anthropique.<sup>7, 11</sup> La poussière minérale est davantage observée dans les régions désertiques, arides et semi-arides résultant de l'entraînement des particules du sol par le vent. Elle contribue à environ 50% de tous les aérosols dans l'atmosphère, ce qui représente plus de 500 milliards de kg/an émis dans l'atmosphère. Le désert du Sahara s'impose comme la plus grande source d'émission de poussière minérale dans le monde.<sup>3, 12</sup> Selon la Figure 1-2, la poussière minérale peut aussi constituer une importante fraction des aérosols en milieux urbains, avec des concentrations relativement plus élevées, notamment en Chine et en Asie du

Sud, représentant environ 35% de la masse totale des aérosols de diamètre inférieur à 10  $\mu\text{m}$ . Cependant, la fraction organique domine dans les zones urbaines d'Amérique du Nord et d'Amérique du Sud, c'est-à-dire 20% en masse ou plus, tandis que dans d'autres régions du monde, la fraction organique occupe simplement la deuxième ou la troisième place avec une moyenne d'environ 16% en masse.<sup>7, 10</sup> Le sulfate représente normalement environ 10 à 30% en masse, sauf dans les zones rurales d'Afrique et d'Amérique du Sud, où il est inférieur à environ 10%. Globalement, le carbone noir constitue moins de 5% de la masse des aérosols, mais ce nombre tend à augmenter dans les zones urbaines et les pays en voie de développement en raison d'une forte utilisation des combustibles fossiles comme source d'énergie et de chauffage.<sup>10</sup>

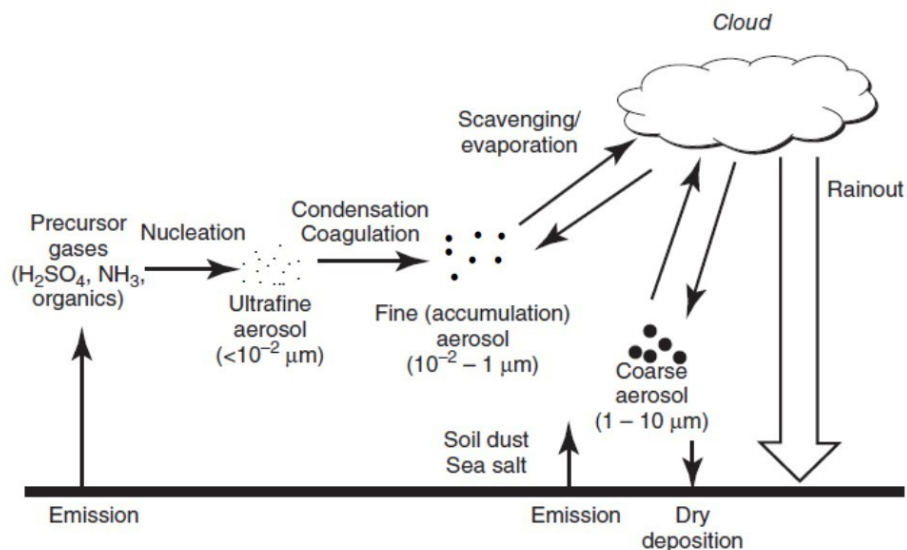


Figure 1-3 Schéma résumant le cycle de vie des aérosols atmosphériques, de la formation au dépôt des aérosols.

(Schéma tiré de Tomasi, Fuzzi, and Kokhanovsky (2017)<sup>7</sup>)

### 1.1.2. Transformation et distribution granulométrique

Une fois émises ou formées dans l'atmosphère, les particules en suspension dans l'air sont transportées par le vent, se mélangent et subissent continuellement diverses interactions et transformations physiques et chimiques, ce qui ajoute davantage de complexité dans l'étude

des aérosols atmosphériques. Cette étape majeure dans le cycle de vie d'un aérosol est nommée le vieillissement atmosphérique. Le cycle de vie des aérosols dans l'atmosphère est brièvement représenté à la Figure 1-3. L'évolution et le vieillissement des aérosols durant leur transport impliquent une série de changements dans la taille, la structure et la composition des particules (p. ex. par la coagulation, la nucléation, l'évaporation, la restructuration, les transitions de phase, l'absorption de gaz, les réactions chimiques, etc.). Plusieurs de ces réactions chimiques se produisent dans les nuages, qui sont par ailleurs formés par condensation ou cristallisation de l'eau sur des particules d'aérosol, qui agissent alors comme des noyaux de condensation ou des noyaux glaçogène.<sup>13</sup> Les processus de nucléation, de coagulation et de condensation, ainsi que les processus de formation des particules nuageuses régulent les concentrations atmosphériques en aérosols et donc le temps de résidence des aérosols.

Les aérosols troposphériques séjournent plus ou moins longtemps dans l'atmosphère, au bout de ce délai, ils sont éliminés par le biais de différents mécanismes bien connus. Le dépôt sec des aérosols à la surface et le dépôt humide des aérosols par précipitation contribuent à la déposition et à l'élimination des particules dans l'air. Par dépôt sec, on entend ici les processus de sédimentation, d'impaction et de diffusion brownienne. D'un autre côté, les dépôts humides, le principal puits à l'échelle mondiale, comprennent la pluie, le brouillard ou la neige. Le temps de résidence des particules d'aérosols émis par des sources primaires ou formés à partir de gaz précurseurs dans l'atmosphère dépend donc fortement de la manière dont les sources, le transport et les puits d'aérosols interagissent. En fonction des propriétés des aérosols et des conditions météorologiques, leur temps de résidence dans l'atmosphère peut s'étaler sur quelques jours et n'excède habituellement pas quelques semaines.<sup>7, 14-15</sup>

Le mélange des aérosols de différentes sources, chacune ayant une distribution en taille distincte, et qui est modifiée par des processus de croissance, d'évaporation et d'élimination, reflète la complexité de la distribution granulométrique des aérosols que l'on retrouve dans l'atmosphère, plus particulièrement celle en milieux urbains. Les aérosols, dont la taille peut varier de quelques nanomètres à plusieurs micromètres de diamètre, sont communément regroupés en 4 grandes catégories de tailles ou modes : les modes de nucléation, d'Aitken, d'accumulation et des particules grossières (Figure 1-4). Chaque mode a des sources



d'émission, une gamme de tailles particulières, des mécanismes de formation et une composition chimique distincts.<sup>1</sup>

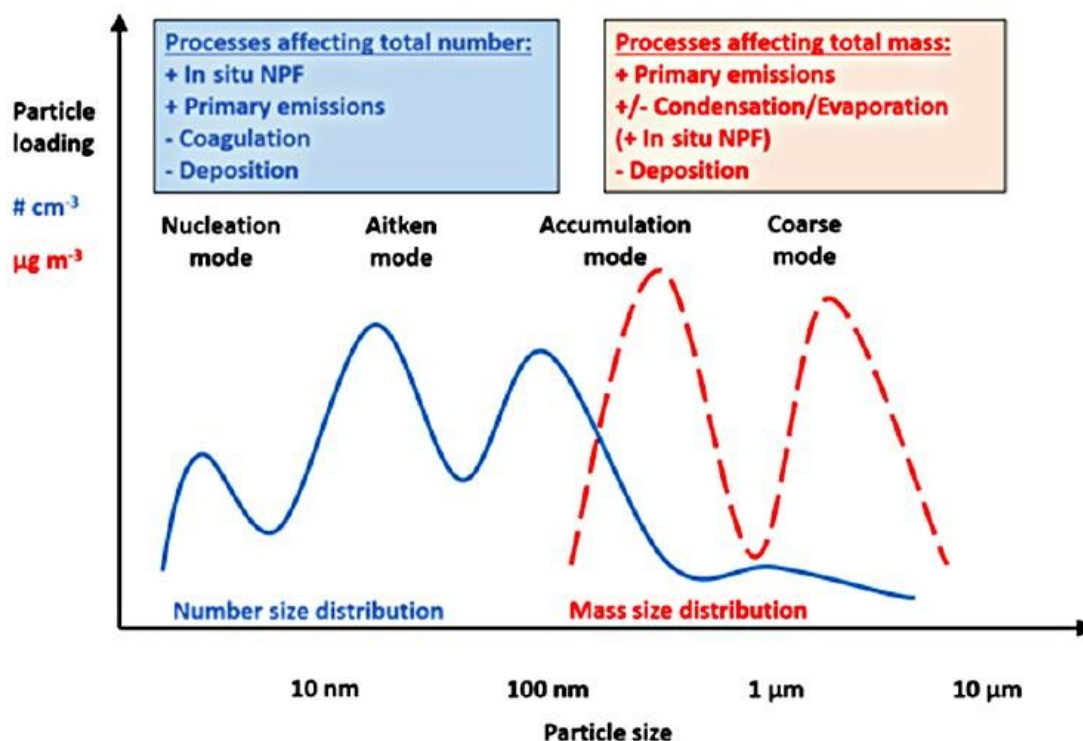


Figure 1-4 Les distributions de la taille en nombre (trait bleu continu) et en masse (trait rouge pointillé) d'une même population d'aérosols. Les différents processus dynamiques les plus importants qui affectent le nombre et la masse totaux des aérosols sont décrits brièvement dans les encadrés.

(Figure tirée de Fuzzi et al. (2015)<sup>14</sup>)

Le mode de nucléation inclut seulement les particules de tailles inférieures à quelques dizaines de nanomètres (1-30 nm). Les particules relatives au mode de nucléation sont facilement détectées en forte concentration en nombre près des sources d'émission. Leur temps de résidence dans l'atmosphère est toutefois relativement très court, car elles grossissent rapidement par coagulation ou condensation pour former des particules plus grosses. Cela explique pourquoi elles sont parfois difficiles à mesurer dans l'environnement. Ces particules sont donc très importantes pour la formation des particules de plus grandes tailles. La majorité des particules en mode nucléation comprend les sulfates, les nitrates et les composés organiques.<sup>16-17</sup> Le mode Aitken désigne une fraction des particules qui chevauchent avec les modes de nucléation et d'accumulation et dont l'intervalle de taille varie de ~10 à 100 nm. Les particules de ce mode se forment sous l'effet de la coagulation et de la condensation des

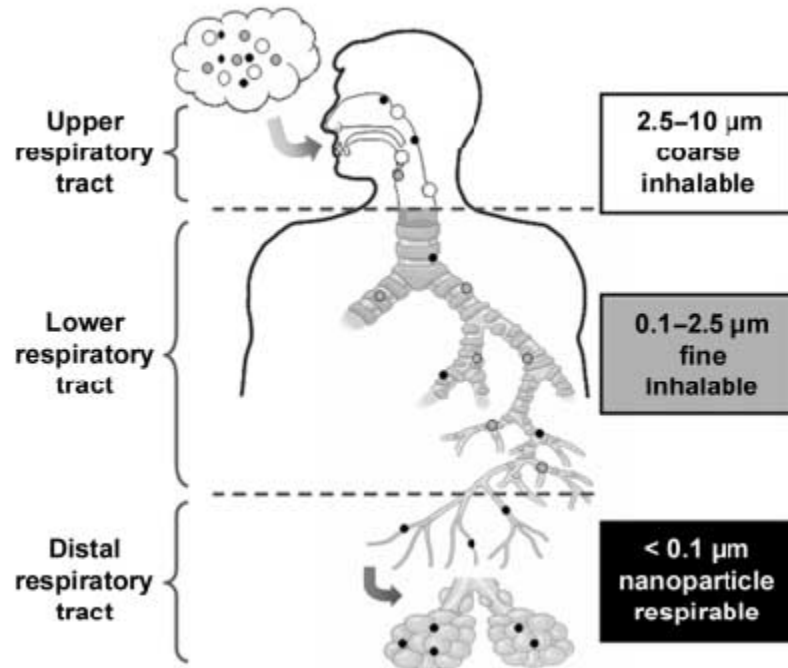
particules en mode nucléation ainsi que par des sources de combustion primaires. Les termes « nanoparticules » et « particules ultrafines » sont largement employés dans les domaines de l'ingénierie et de la santé pour indiquer ces deux premiers modes de tailles.<sup>7, 16</sup>

Les particules en mode accumulation se caractérisent par une gamme de tailles qui s'étend de 100 nm à 2.5  $\mu\text{m}$ , un grand nombre de particules et une masse totale importante. Elles sont également formées par le grossissement de particules en mode nucléation et Aitken. Comme son nom l'indique, ces particules ne font que s'accumuler dans l'atmosphère due au fait que les procédés d'élimination, c'est-à-dire le dépôt humide ou le grossissement en des particules plus grosses, sont beaucoup moins efficaces dans cette catégorie de tailles. Par conséquent, ces particules ont des temps de résidence plus longs que ceux des modes de nucléation et Aitken et leur concentration tend à augmenter par accumulation de ces particules. Les particules dites fines désignent à la fois les particules en mode nucléation, Aitken et en mode accumulation.<sup>17-18</sup> Finalement, le dernier mode comprend toutes les grosses particules de taille supérieure à 2.5  $\mu\text{m}$ . Elles contiennent principalement des aérosols de nature anthropique comme l'agriculture ou les activités minières, le sel marin et la poussière. En raison de leur grande taille, ces particules se déposent rapidement.<sup>7, 18</sup>

### 1.2. Impact des aérosols sur la santé et la qualité de l'air

La pollution de l'air, autant à l'intérieur qu'à l'extérieur des bâtiments, représente un problème environnemental majeur pour la santé humaine à l'échelle mondiale, et ce, pas seulement dans les environnements hautement pollués. En 2016, l'Organisation mondiale de la santé (OMS) estimait que 4,2 millions de personnes sont décédées prématurément dans le monde dû aux effets de la pollution ambiante dans les zones urbaines et rurales. Il a été démontré que cette mortalité est attribuable en grande partie à l'exposition aux matières particulaires en suspension dans l'air.<sup>19-20</sup> Les particules d'aérosols atmosphériques étant en suspension dans l'air, il y a effectivement un risque constant de les inhaler. La taille des particules est le paramètre clé qui détermine leur site de déposition dans les voies respiratoires. Les particules les plus grosses, autrement dit celles dont le diamètre est supérieur à 10  $\mu\text{m}$  et qui sont visibles à l'œil nu, ne sont pas les plus inquiétantes pour la santé. Retenues par les voies aériennes supérieures (p. ex. nez ou gorge), elles ne réussissent simplement pas à entrer dans l'appareil respiratoire.

Les particules dites « respirables » dont le diamètre est inférieur à 10  $\mu\text{m}$ , aussi appelées  $\text{PM}_{10}$ , ont la capacité de pénétrer par inhalation et de se loger plus ou moins profondément à l'intérieur des poumons comme montrés à la Figure 1-5. Les particules de diamètre compris entre 2,5 et 10  $\mu\text{m}$  ou particules grossières sont en mesure d'atteindre les parties supérieures du système respiratoire avant d'être éliminées par la filtration des cils de l'arbre respiratoire et la toux. Les particules de diamètre inférieur à 2,5  $\mu\text{m}$  ou particules fines ( $\text{PM}_{2,5}$ ) sont les plus nocives pour la santé. En effet, elles progressent jusqu'au bout des voies respiratoires, se déposent par sédimentation dans les poumons ou pénètrent le système sanguin en passant au travers de la barrière alvéolo-capillaire.<sup>21-23</sup> Les nanoparticules ou particules ultrafines (UFP) dont le diamètre est inférieur à 100 nm sont suffisamment petites pour franchir les barrières pulmonaires et entrer dans la circulation sanguine. Ensuite, elles peuvent se déplacer dans le corps, atteindre des organes vitaux comme le cerveau, passer à travers les membranes cellulaires des organismes et interagir avec les systèmes biologiques. Plus les particules sont petites, plus elles pénètrent facilement et profondément dans le système respiratoire et elles sont donc plus susceptibles d'induire des effets néfastes sur la santé comparativement aux particules plus grosses.<sup>22,24</sup>



**Figure 1-5** Représentation schématique des dépôts des particules grossières (inhalables), fines (thoraciques), et ultrafines ou nanoscopiques (respirables) dans le système respiratoire de l'humain.

(Illustration tirée de Bérubé et al. (2007)<sup>25</sup>)

De nombreuses études épidémiologiques et toxicologiques ont démontré que l'exposition à la matière particulaire était associée à un large éventail de maladies aiguës et chroniques. Une exposition à long terme à des concentrations élevées de particules fines augmente le risque de cancer du poumon, de diabète, de maladies respiratoires et cardiovasculaires, alors qu'une forte exposition à court terme peut rapidement provoquer une exacerbation de plusieurs formes de maladies respiratoires, ainsi que des changements de la variabilité du rythme cardiaque.<sup>25-27</sup> Les maladies respiratoires et cardiovasculaires incluent, entre autres, la bronchite chronique<sup>28</sup>, l'athérosclérose (qui peut mener aux accidents vasculaires cérébraux)<sup>29-30</sup>, les épisodes d'hypertension<sup>31-32</sup>, l'arythmie<sup>33</sup>, les allergies et l'asthme<sup>34-35</sup>. Les problèmes respiratoires et cardiovasculaires liés à l'exposition à la matière particulaire apparaissent autant en milieux urbains que ruraux.<sup>36-37</sup>

Les enfants et les personnes âgées sont les sous-groupes de population les plus vulnérables aux effets de l'exposition aux particules. Quelques études ont démontré une corrélation entre l'exposition aux particules fines et les effets négatifs sur la reproduction,

notamment l'accouchement prématuré, la prééclampsie et les malformations cardiovasculaires chez l'enfant.<sup>38-39</sup> Les femmes enceintes exposées aux particules fines risquent aussi de donner naissance à des nouveau-nés de faible poids.<sup>40</sup> La pollution de l'air a également des répercussions sur le développement neurologique et les capacités cognitives de l'individu tout au long de sa vie, tels qu'un léger trouble cognitif et des maux de tête.<sup>41-43</sup> Des études très récentes ont pu établir un lien entre l'exposition aux particules fines et les pathologies cérébrales associées aux maladies de Parkinson et d'Alzheimer.<sup>44-45</sup>

À ce jour, les mécanismes physiologiques par lesquels les particules d'aérosols interagissent dans le corps humain et entraînent des effets néfastes sur la santé sont encore peu clairs.<sup>46</sup> La toxicité des particules dépend de leur taille géométrique, de leur aire de surface, de leur composition chimique et de leur concentration.<sup>47</sup> Les nanoparticules sont parmi les plus toxiques pour l'être humain. En plus d'avoir une grande probabilité de pénétration et de déposition dans les systèmes respiratoire et cardiovasculaire, les plus petites particules ont une plus grande surface par unité de volume que les grosses particules, ce qui les rend particulièrement réactives ou catalytiques.<sup>16, 48</sup> De plus, ces particules voient leur capacité d'absorption de composés organiques, dont certains sont potentiellement cancérigènes, augmenter considérablement.<sup>17</sup> Elles peuvent alors véhiculer des composés cytotoxiques, allergènes, mutagènes ou cancérigènes, comme les métaux lourds ou les hydrocarbures aromatiques polycycliques et leurs dérivés.<sup>21</sup>

### 1.3. Impact sur le climat et l'atmosphère

Le Soleil émet en permanence de l'énergie rayonnante qui traverse l'atmosphère terrestre et régule le climat de notre planète. Bien qu'une grande partie de ce rayonnement solaire soit absorbée par le sol et les océans, ce n'est pas toute l'énergie rayonnée par le Soleil qui atteint la surface de la Terre. Une fraction relativement importante de cette énergie est effectivement interceptée par les aérosols et les nuages qu'ils ensemencent.<sup>46</sup> La taille des aérosols est comparable aux longueurs d'onde du rayonnement solaire, qui se situent principalement entre 0.3 et 4.0  $\mu\text{m}$ , et souvent inférieure à celles du rayonnement tellurique émis par la Terre qui varient entre 0.4 et 25  $\mu\text{m}$ .<sup>7</sup> Par conséquent, les aérosols interagissent très fortement avec la radiation solaire (de courtes longueurs d'onde) et faiblement avec la radiation terrestre (de plus longues longueurs d'onde). Par ces fortes interactions, les aérosols induisent alors d'importants changements sur le bilan radiatif terrestre. Ces changements se produisent par le biais de plusieurs mécanismes différents qui se divisent en effets direct, semi-direct et indirect. Longtemps considéré comme marginal, l'impact des aérosols atmosphériques sur le système climatique et les nuages fait l'objet depuis plusieurs années d'une grande attention de la part de la communauté scientifique et de ceux qui tentent de freiner les changements climatiques. Les interactions entre les aérosols, les nuages et le rayonnement électromagnétique sont encore très mal comprises de nos jours et représentent la plus grande source d'incertitude dans les prévisions climatiques.<sup>10</sup>

#### 1.3.1. Effet radiatif direct

Les aérosols interagissent avec la radiation solaire et, dans une moindre mesure, avec la radiation tellurique par diffusion ou absorption dépendamment de leurs propriétés optiques. Ces propriétés de diffusion et d'absorption de la lumière correspondent à ce qui est habituellement appelé l'effet direct des aérosols. La plupart des aérosols retrouvés dans l'atmosphère interagissent avec le rayonnement solaire en le déviant dans toutes les directions et vers l'espace de manière anisotrope. Ce processus s'appelle la diffusion. À titre d'exemple, les sulfates et les nitrates purs sont connus pour réfléchir totalement la radiation solaire qu'ils reçoivent. Certains aérosols absorbent partiellement ou totalement la radiation solaire pour

ensuite la transformer sous une autre forme d'énergie comme la chaleur, un processus appelé l'absorption. Le carbone noir est un exemple d'aérosol absorbant le rayonnement.<sup>3-4, 7, 46</sup>

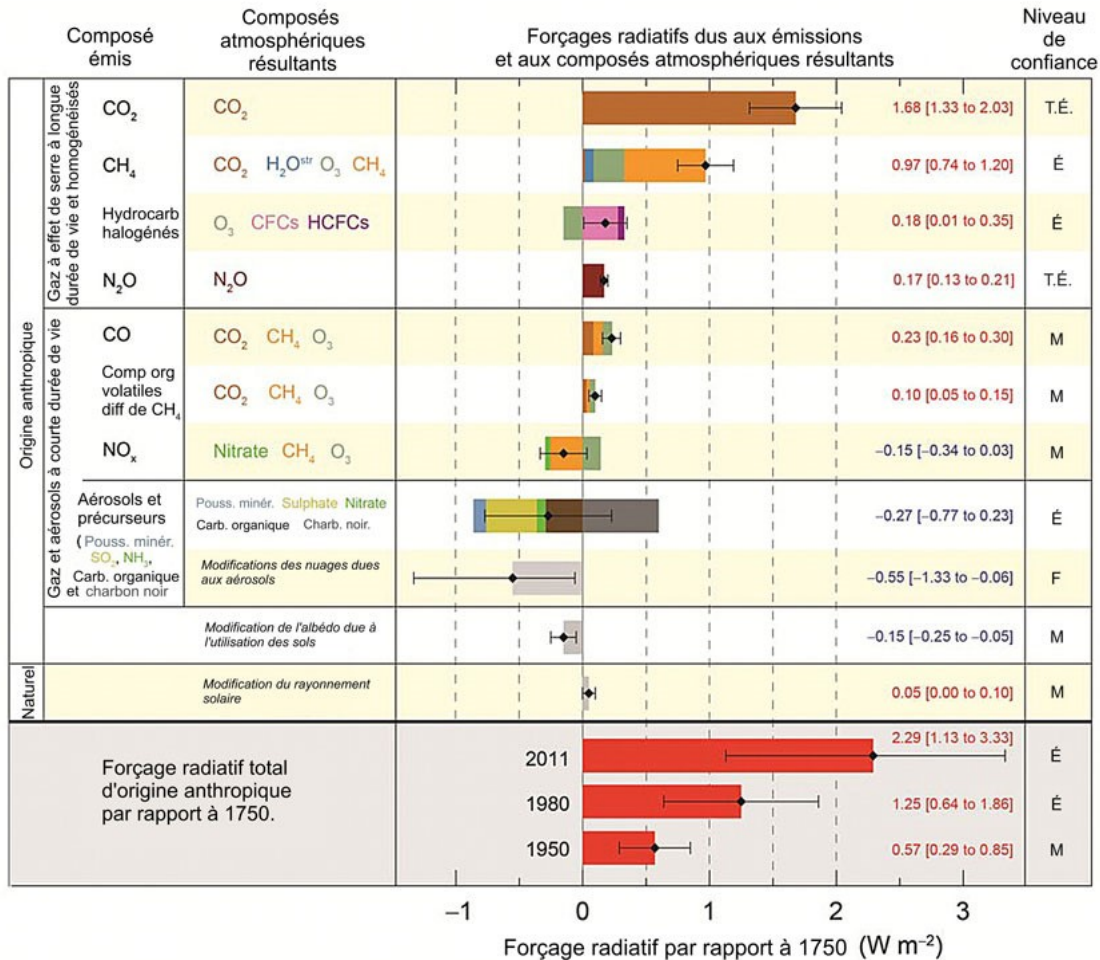


Figure 1-6 Moyenne globale des forçages radiatifs estimés pour l'année 2011 par rapport à 1750 pour les gaz à effet de serre, les aérosols atmosphériques et autres gaz avec leur niveau de confiance scientifique qui est noté F (faible), M (moyen), E (élevé), et TE (très élevé).

(Tableau tiré du 5<sup>e</sup> rapport du GIEC (2013)<sup>10</sup>)

La diffusion et l'absorption de la radiation par les aérosols atmosphériques entraînent un changement d'équilibre entre les radiations pénétrant l'atmosphère et celles qui s'en échappent. Le changement du flux énergétique qui y est associé se traduit en matière de forçage radiatif et se mesure généralement en watt par mètre carré (W m<sup>-2</sup>) au sommet de l'atmosphère. La diffusion par les aérosols cause une diminution marquée du flux de

rayonnement solaire qui atteint la surface de la Terre et une augmentation de la fraction du rayonnement solaire renvoyée dans l'espace, ce qui cause globalement une perte d'énergie pour le système climatique. Ainsi, l'effet de ces aérosols contribue au refroidissement de la planète et produit donc un forçage radiatif négatif (Figure 1-6). Les aérosols qui diffusent la lumière exercent un effet opposé aux gaz à effet de serre sur la température globale de notre planète en ralentissant le réchauffement climatique. D'un autre côté, l'absorption par les aérosols capture le rayonnement solaire et réchauffe la couche atmosphérique dans laquelle ils résident, ce qui augmente la quantité d'énergie dans le système climatique terrestre. Dans ces conditions, cet effet cause un réchauffement de la planète identique aux gaz à effet de serre et produit cette fois-ci un forçage radiatif positif.<sup>6, 10</sup> Dans le rapport AR5 du Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat (GIEC), le forçage radiatif attribué à l'effet direct des aérosols est évalué au mieux à  $-0.35 \text{ W m}^{-2}$  avec une assez grande incertitude allant de  $-0.85$  à  $+0.15 \text{ W m}^{-2}$ .<sup>10</sup> La présence des aérosols dans l'air compense donc une partie du réchauffement dû aux gaz à effet de serre.

L'ampleur du forçage radiatif résultant de l'effet direct des aérosols dépend également de la réflectivité de la surface au-dessus de laquelle ils se trouvent ou de l'albédo de la planète. L'albédo se définit comme la fraction du rayonnement solaire réfléchi par une surface ou un objet et il est souvent exprimé sous forme de pourcentage. Les surfaces de couleur claire comme celles recouvertes de neige et de glace ont un albédo élevé et réfléchissent davantage la radiation. Les surfaces plus sombres telles que les océans ont un faible albédo et réfléchissent donc beaucoup moins bien la lumière. Cela dit, si les aérosols qui diffusent fortement la lumière se trouvaient au-dessus d'une surface de faible albédo, le forçage radiatif généré serait bien plus grand que celui produit au-dessus d'une surface d'albédo élevé. Il va de même pour les aérosols fortement absorbants avec un forçage radiatif plus important au-dessus d'une surface d'albédo élevé.<sup>4, 49</sup> Une simple variation de l'albédo de surface peut alors modifier de beaucoup la valeur absolue du forçage radiatif. Le signe net du forçage radiatif des aérosols peut être déterminé par l'albédo de diffusion simple qui est le rapport entre la diffusion et la somme de la diffusion et de l'absorption (c'est-à-dire l'extinction). L'albédo s'approche de 1 pour les aérosols où la diffusion domine tandis qu'elle décroît à mesure que l'absorption augmente. Par exemple, le sel de mer qui diffuse entièrement la lumière a un



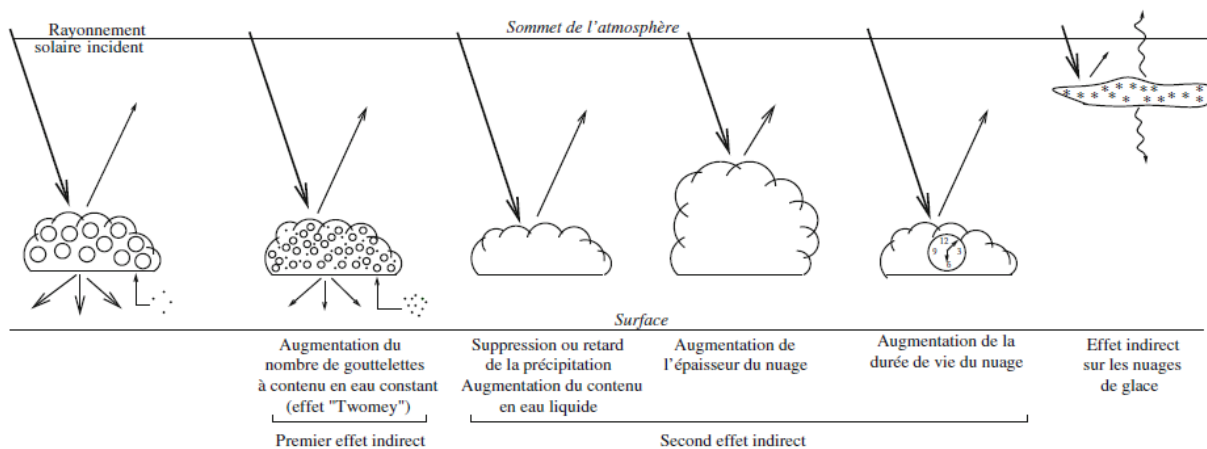
albédo près de 1 alors que celui du carbone noir tourne autour de 0.2. Les aérosols sont communément décrits comme des agents de forçage climatique de courtes durées, car leur temps de résidence dans l'atmosphère est beaucoup plus court que celui du CO<sub>2</sub>.<sup>50-51</sup>

### 1.3.2. Effet indirect

Les aérosols influencent aussi indirectement le climat de la planète en modifiant les propriétés microphysiques des nuages et, par la suite, leurs propriétés optiques, leur proportion et leur durée de vie. C'est pourquoi on ne parle pas de l'effet direct des aérosols sur les nuages, mais bien des effets indirects des aérosols. L'influence des aérosols sur les nuages est considérée comme l'une des principales incertitudes à élucider dans les modèles climatiques malgré les nombreuses publications scientifiques qui y sont consacrées. Les interactions entre les aérosols et les nuages sont illustrées à la Figure 1-7. Il faut bien garder à l'esprit que ces effets indirects des aérosols varient considérablement dans l'espace et le temps. D'ailleurs, la formation des nuages et des précipitations est davantage gouvernée par des processus dynamiques de grande échelle liés à des influences météorologiques normales (température, vent et humidité), si bien que l'impact des aérosols sur les propriétés des nuages n'est que secondaire. Pour ces raisons, le forçage radiatif attribué aux effets indirects des aérosols reste extrêmement mal caractérisé.<sup>8, 52</sup> À l'échelle mondiale, les effets indirects tendent normalement à contrebalancer partiellement le réchauffement planétaire résultant de l'augmentation des gaz à effet de serre dans l'atmosphère en provoquant un refroidissement avec un forçage radiatif globalement négatif selon le 5<sup>e</sup> rapport du GIEC.<sup>53</sup>

Les nuages se forment généralement dans la troposphère lorsqu'il y a suffisamment de vapeur d'eau contenue dans l'air pour qu'elle se condense. Les aérosols jouent un rôle de premier plan dans ce processus. En effet, la formation des nuages serait impossible sans la présence des aérosols en raison notamment de la tension superficielle élevée de l'eau (surtout pour les très petites gouttelettes de moins de 10 nm de diamètre) et du coût énergétique élevé de la nucléation homogène de la vapeur d'eau. La plupart des nuages observés dans le ciel doivent donc leur existence aux aérosols qui se comportent comme des noyaux de condensation ou des noyaux glaçogènes sur lesquels la vapeur d'eau présente dans l'atmosphère peut se condenser ou se geler.<sup>3, 11</sup> La condensation autour des particules

d'aérosols, qui dépend de leur composition chimique et de leur taille, favorise la formation de gouttelettes d'eau liquide ou des cristaux de glace qui composent les nuages. Dans les environnements peu pollués, les aérosols d'origine naturel comme les sulfates, les sels marins et les poussières désertiques servent souvent de noyaux de condensation.<sup>4</sup> L'influence des gouttelettes d'eau ou des cristaux de glace du nuage sur le rayonnement solaire et tellurique est considérable. Tout comme les aérosols, les nuages ont un impact majeur sur le bilan radiatif terrestre, puisqu'ils sont capables de réfléchir vers l'espace le rayonnement solaire et d'emprisonner le rayonnement tellurique qui s'échappe vers l'espace.<sup>52</sup>



**Figure 1-7 Représentation schématique des différents effets indirects des aérosols. Les points noirs représentent les particules d'aérosols et les cercles blancs correspondent aux gouttelettes nuageuses. Les traits noirs représentent le rayonnement solaire incident ou réfléchi par les nuages.**

(Schéma tiré de Boucher (2012)<sup>8</sup>)

Un accroissement de la concentration en aérosols peut induire une augmentation de la concentration atmosphérique des noyaux de condensation dans l'atmosphère, ce qui peut mener à différents effets sur la formation et les propriétés des nuages et des précipitations. Le premier effet indirect des aérosols est associé à une augmentation du nombre de gouttelettes d'eau nuageuse et à une diminution de la taille des gouttelettes pour une quantité d'eau constante à l'intérieur des nuages quand les concentrations en aérosols augmentent. Les gouttelettes d'eau, qui sont alors présentes en plus grande proportion, réfléchissent davantage les rayonnements de courtes longueurs d'onde, c'est-à-dire une augmentation de l'albédo des nuages.<sup>3, 53-54</sup> Cet effet est aussi appelé l'effet de l'albédo des nuages ou effet de Twomey.<sup>55</sup> La réduction de la taille des gouttelettes d'eau nuageuse conduit également à une diminution

du taux de précipitation et donc à une augmentation de la durée de vie des nuages ou de l'épaisseur du nuage. Le prolongement de la durée de vie des nuages se traduit de nouveau par une augmentation de la quantité du rayonnement solaire réfléchi par des nuages.<sup>3, 53-54</sup> Le second effet indirect est également connu sous le nom de l'effet de durée de vie des nuages ou effet d'Albrecht.<sup>56</sup> De plus, une diminution du diamètre des gouttelettes nuageuses devrait permettre de ralentir le gel sachant que les plus grosses gouttelettes gèlent plus rapidement que les plus petites gouttelettes. On parle alors d'effet thermodynamique (pas présent dans la figure). Par cet effet, les nuages deviennent ainsi plus froids et atteignent des altitudes plus élevées.<sup>53-54, 57</sup> Enfin, les aérosols peuvent aussi modifier la formation des nuages de glace qui sont composés de cristaux de glace et des nuages dits mixtes qui sont composés à la fois de gouttelettes d'eau et de cristaux de glace. Une augmentation du nombre de noyaux glaçogènes contribue au réchauffement en diminuant la quantité de nuages due à une augmentation des précipitations. Cet effet est souvent appelé l'effet indirect des aérosols sur les nuages de glace ou effet de glaciation des aérosols.<sup>53-54, 57</sup>

### 1.3.3. Carbone noir et l'effet semi-direct

Le degré d'absorption de la radiation par rapport à celui de la diffusion dépend du type et de l'état du mélange des aérosols. Les aérosols qui absorbent la radiation solaire dans l'atmosphère sont principalement le carbone noir, mais aussi dans une certaine mesure les poussières minérales et certains composés organiques ou carbone brun.<sup>54</sup> Le carbone noir, souvent appelé la suie ou le carbone élémentaire, est responsable de la majeure partie de l'absorption de la lumière par les aérosols atmosphériques et il revêt donc d'une importance capitale pour l'effet direct des aérosols sur l'équilibre climatique. Il est essentiellement constitué d'agrégats de carbone solide et presque pur avec une structure quasi semblable au graphite dont la couleur noire lui permet d'absorber le rayonnement solaire à toutes les longueurs d'onde du spectre visible.<sup>58-60</sup> Par conséquent, l'interaction du carbone noir avec le rayonnement solaire induit un forçage radiatif positif net au sommet de l'atmosphère, ce qui conduit éventuellement à un fort réchauffement atmosphérique. Le forçage radiatif direct du carbone noir de 1759 à 2011 a été évalué à  $+0,40 \text{ W m}^{-2}$  avec une plage d'incertitude de  $+0,05$  à  $+0,80 \text{ W m}^{-2}$ .<sup>10</sup>

Le réchauffement causé par le carbone noir est surtout concentré dans l'hémisphère Nord, y compris les régions arctique et subarctique.<sup>61-62</sup> Les émissions de carbone noir, qui sont principalement d'origine anthropogénique, sont le deuxième plus important contributeur humain aux changements climatiques après les émissions de dioxyde de carbone.<sup>63</sup> Une estimation du signe et l'ampleur du forçage radiatif net associé aux émissions du carbone noir ne peut se faire sans tenir en compte l'état de mélange des particules de carbone noir. Le carbone noir qui a séjourné relativement longtemps dans la troposphère se retrouve souvent coagulé avec d'autres particules d'aérosol telles que le sulfate ou les composés organiques, ce qui a pour effet d'amplifier ou d'atténuer l'absorption de la radiation solaire. Les particules de carbone noir fraîchement émises des sources de combustion n'ont pas encore eu assez de temps pour se coaguler avec les autres particules d'aérosols.<sup>14, 54, 64-65</sup> Un changement dans l'état de mélange du carbone noir peut tout aussi modifier la distribution en taille et l'hygroscopicité, ce qui affecte ensuite les propriétés optiques des aérosols carbonés et leur capacité à agir en tant que noyaux de condensation.<sup>10</sup>

Alors que la plupart des aérosols augmentent la réflexion et la durée de vie des nuages, les aérosols absorbants ou partiellement absorbants peuvent avoir l'effet inverse en réchauffant l'atmosphère localement et en modifiant le profil vertical de température. Ce réchauffement local a un impact immédiat sur l'humidité relative, la stabilité de l'atmosphère et sur le cycle de vie des nuages. L'effet d'absorption du rayonnement solaire par les aérosols sur les nuages s'appelle l'effet semi-direct des aérosols et il est encore plus mal défini que les effets direct et indirect.<sup>3</sup> Il a été introduit pour la première fois par Hansen, et al. (1997)<sup>50</sup>. Les auteurs avaient observé que le réchauffement de la troposphère par le carbone noir pouvait entraîner une dissipation des couches nuageuses basses en les évaporant. Cet effet réchauffe l'atmosphère, puisque les nuages bas ont un effet refroidissant sur le climat. Toutefois, l'effet semi-direct ne s'arrête pas là et englobe plusieurs mécanismes compliqués dont un bref résumé est présenté à la Figure 1-8. Les mécanismes en réponse à l'effet d'absorption par les aérosols dépendent de la position relative de l'aérosol et du nuage, du type de nuage et des conditions météorologiques.<sup>3, 54</sup> Il est important de se rappeler que ces mécanismes restent toujours incertains et mal modélisés surtout dans les modèles à grande échelle.<sup>10</sup>

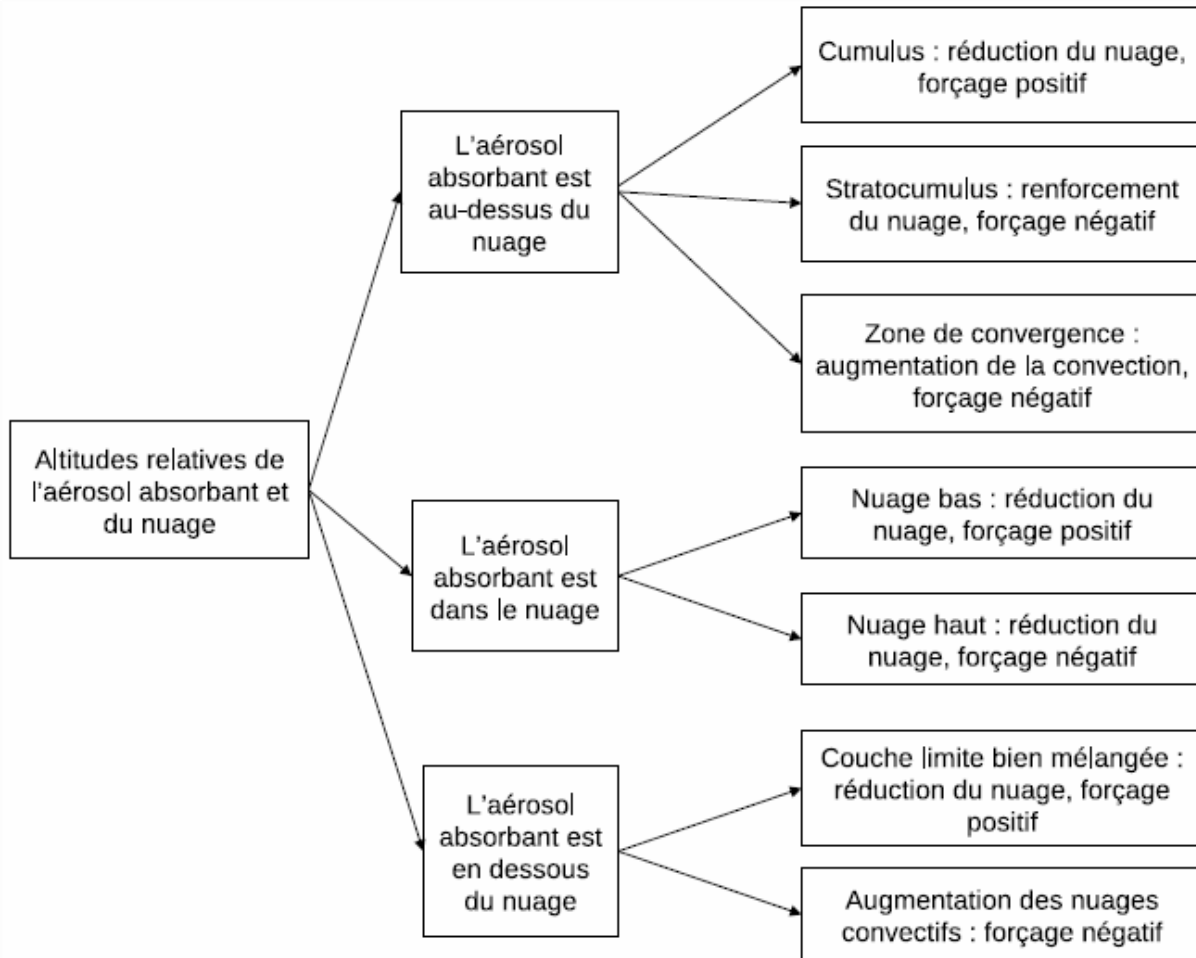


Figure 1-8 Ensemble des mécanismes liés à l'effet semi-direct des aérosols absorbants.

(Diagramme tiré de Boucher (2012)<sup>8</sup>)

Un autre effet propre au carbone noir et aux aérosols absorbants est l'impact radiatif des aérosols sur les surfaces réfléchissantes. La neige et la glace sont des surfaces très réfléchissantes et recouvrent environ 7,5 à 15% de la surface de la Terre selon la période de l'année.<sup>66</sup> Lorsque les aérosols absorbants se déposent sur une surface couverte de neige ou de glace, ils peuvent venir changer l'albédo de cette surface. Le dépôt sec et humide des aérosols absorbants comme le carbone noir provoque le noircissement de la neige et de la glace, ce qui diminue l'albédo de ces surfaces et les rend plus absorbantes. L'absorption par les aérosols situés à la surface réchauffe la neige et la glace, accélère leur fonte et réduit éventuellement la couverture neigeuse et l'étendue des glaces.<sup>3</sup> Les régions comme l'Arctique et l'Himalaya sont particulièrement vulnérables aux effets de réchauffement et de fonte de la neige/glace par le

carbone noir.<sup>67-69</sup> De nombreuses études suggèrent qu'il s'agit de l'un des principaux facteurs au retrait de la banquise en Arctique.<sup>63-64</sup> La diffusion de la radiation par les aérosols importe peu, car la neige et la glace sont déjà des surfaces très diffusantes.<sup>3</sup> L'effet des aérosols sur l'albédo de la neige et de la glace est davantage ressenti au printemps, puisque la couverture neigeuse est plus étendue avec une exposition accrue à la lumière du Soleil.<sup>63</sup>

### 1.4. Pollution atmosphérique en Arctique

#### 1.4.1. Réchauffement climatique dans l'Arctique

L'Arctique est un vaste océan entouré de continents et situé au pôle Nord de la Terre comme montré à la Figure 1-9, c'est-à-dire à l'intérieur et aux abords du cercle polaire arctique. Le cercle arctique est un parallèle se trouvant à 66° 33' au nord de l'équateur au-delà duquel le soleil ne se couche pas au solstice d'été (20 ou 21 juin) et ne se lève pas pendant le solstice d'hiver (21 ou 22 décembre). La région polaire est limitrophe avec six États riverains, à savoir la Norvège, la Russie, les États-Unis (Alaska), le Canada, le Danemark (Groenland) et l'Islande. L'océan Arctique, qui couvre une surface de plus de 12 millions de km<sup>2</sup>, est recouvert d'une vaste étendue de glace en hiver et est partiellement gelé le reste de l'année.<sup>70</sup> La cryosphère de l'Arctique fait partie intégrante du système climatique de la Terre et a connu des changements drastiques sans précédent au cours des dernières décennies. Selon la Figure 1-10, le réchauffement climatique est plus rapide en Arctique que partout ailleurs sur la planète avec une augmentation des températures atmosphériques presque deux fois plus élevée que la moyenne mondiale au cours des 100 dernières années.<sup>10</sup> 2019 a été une des années les plus chaudes jamais enregistrées sur la planète avec notamment le mois de juillet le plus chaud de l'histoire.<sup>71-72</sup> Ce phénomène observé dans les régions polaires est souvent qualifié d'amplification polaire ou arctique.<sup>73</sup> La fonte de la calotte glacière, la réduction de l'étendue ou de l'épaisseur de la banquise et du manteau neigeux, la fonte du pergélisol et l'élévation du niveau de la mer et de sa température sont des signes comme quoi l'Arctique vit actuellement une mutation rapide à un rythme inédit.<sup>74-76</sup> La superficie de la banquise a atteint un niveau historiquement bas en 2019 qui devient la seconde pire année depuis les enregistrements satellites après 2012 selon les données du Centre national américain de données sur la neige et de la glace (NSIDC).<sup>77</sup> Plusieurs chercheurs affirment aussi que l'océan Arctique pourrait être « libre de glace » durant l'été avant la fin du siècle.<sup>74, 78</sup>

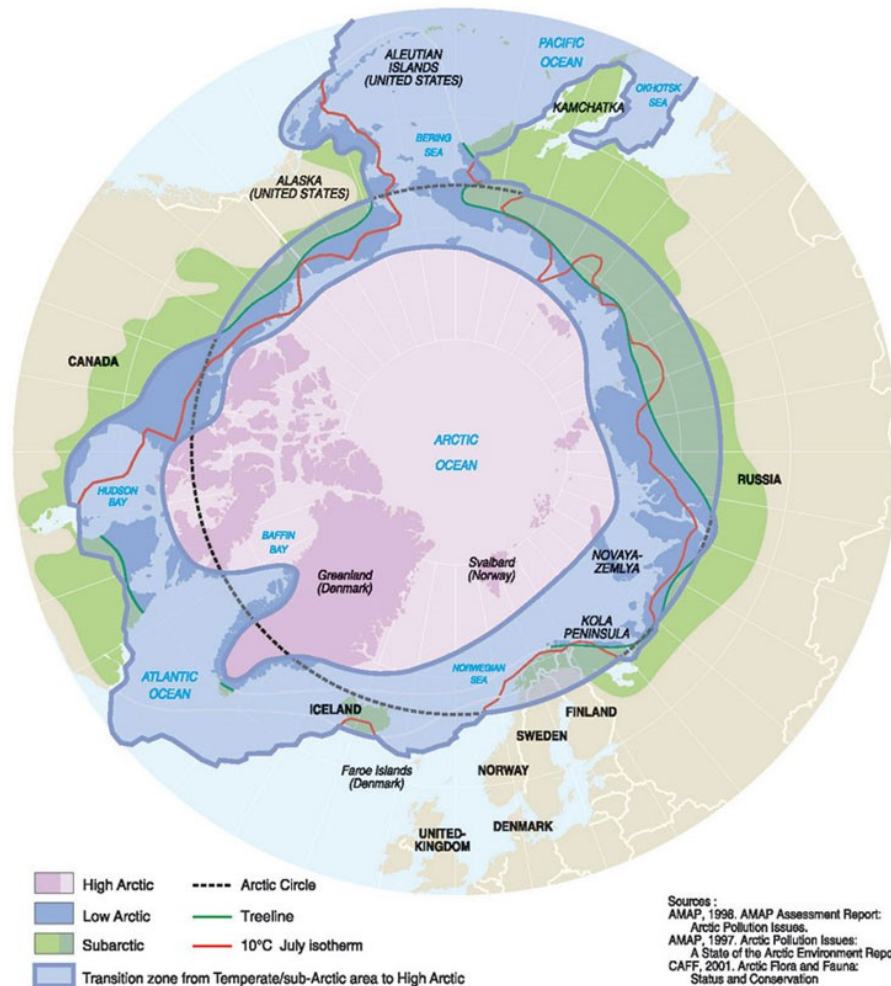


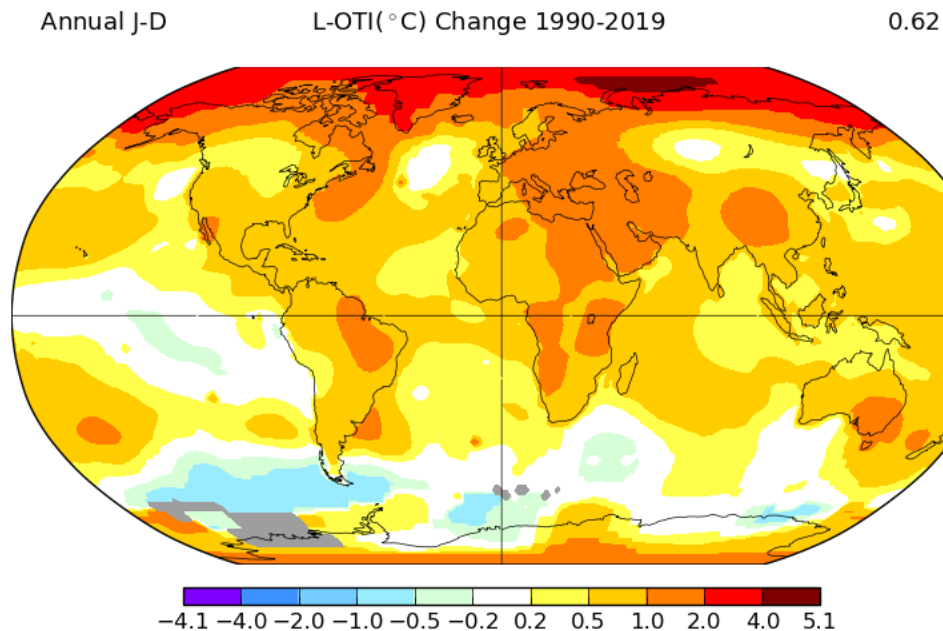
Figure 1-9 Carte de l'Arctique et de ses environs avec le cercle arctique en tirets noirs.

(Carte tirée de The Arctic Centre<sup>79</sup>)

Le retrait de la glace marine et l'augmentation de la température de l'air et des eaux en Arctique risquent de modifier les conditions météorologiques de la région, d'augmenter l'érosion côtière, de perturber les circulations océaniques et atmosphériques, de nuire à la santé des communautés nordiques, et de dévaster le fragile écosystème arctique.<sup>80-83</sup> De plus, la fonte des glaces de mer en Arctique va permettre d'ouvrir l'océan Arctique au transport maritime et à l'extraction des ressources naturelles comme le pétrole et le gaz. Plus d'un cinquième des réserves de pétrole et de gaz non découvertes dans le monde se trouve actuellement au nord du cercle arctique. Bien que l'intensification du trafic maritime et de l'exploitation pétrolière dans l'Arctique puisse offrir de nombreuses possibilités de développement économique, une hausse de l'activité humaine en Arctique risque fortement



d'augmenter les émissions de gaz à effet de serre et d'autres polluants dans l'environnement, ce qui aura un impact immédiat sur le climat et la santé environnementale dans la région.<sup>84-86</sup> Enfin, le déclin de l'étendue de la couverture glaciaire engendrerait une diminution radicale de l'albédo planétaire et des rejets potentiels de méthane emprisonné dans le pergélisol, ce qui pourrait mener à une accélération du réchauffement mondial et régional.<sup>82, 87</sup> Les conséquences de ce réchauffement se feront également sentir dans le monde entier, car ce qui se passe en Arctique ne reste pas en Arctique. La région polaire est souvent désignée par la communauté scientifique comme le « baromètre » du changement climatique dans le monde. Les répercussions se manifestent déjà par l'élévation du niveau de la mer, les changements dans les modèles climatiques et les précipitations, la multiplication des phénomènes météorologiques extrêmes (p. ex. les inondations, les feux de forêt et les sécheresses) et la migration et la perte des stocks de poissons, d'oiseaux et de mammifères. De grands bouleversements, qui touchent autant la faune, la flore et les communautés, sont donc à prévoir dans la région dans les prochaines années.<sup>10, 88</sup> L'Arctique constitue de nos jours un monde de possibilités et d'enjeux qui nous concerne tous.



**Figure 1-10 Tendances linéaires de la température annuelle moyenne de l'air à la surface pour la période 1990 – 2019 d'après une analyse de température par le Goddard Institute for Space Sciences de la National Aeronautics and Space Administration (NASA-GISS).**

(L'analyse de la température de surface se base sur les données du GISTEMP<sup>89</sup>)

L'amplification arctique se produit tout au long de l'année, mais elle est plus prononcée durant les saisons d'automne et d'hiver. Pourquoi le réchauffement climatique est-il amplifié en Arctique? L'explication la plus simple serait que le réchauffement initial favorise la fonte des couvertures neigeuses et glacières hautement réfléchissantes (albédo élevé), exposant ainsi les surfaces sombres sous-jacentes (faible albédo) qui absorbent fortement la radiation solaire, ce qui entraînerait nécessairement un réchauffement supplémentaire et un retrait plus important de l'étendue de la couverture de neige et de glace. Cependant, l'amplification du réchauffement en Arctique telle qu'elle est actuellement comprise est en fait le résultat de plusieurs processus relativement complexes qui opèrent à différentes échelles temporelles et spatiales. Les processus les plus importants qui contribuent à ce phénomène sont notamment les effets radiatifs locaux attribuables à l'augmentation des émissions de gaz à effet de serre, les changements dans la rétroaction de l'albédo des neiges et des glaces induites par une diminution de la cryosphère, les variations dans la concentration des aérosols, les dépôts de carbone noir sur les surfaces couvertes de neige ou de glace, les variations dans la convergence du flux de chaleur et d'humidité entre l'océan Arctique et l'atmosphère à cause du retrait ou de l'expansion de la glace marine, les changements dans la couverture nuageuse et la teneur en vapeur d'eau en Arctique et enfin une légère augmentation des émissions de rayonnement à longues longueurs d'onde vers l'espace comparativement aux régions tropicales. Ces différents processus n'agissent pas séparément et sont évidemment interreliés.<sup>73, 90</sup>

L'augmentation de la concentration des gaz à effet de serre dans l'atmosphère sont, sans aucun doute, les principaux responsables des changements climatiques, mais de récentes études suggèrent que les agents de forçage climatique à courte durée de vie comme les aérosols contribuent également de manière considérable au réchauffement observé dans l'Arctique.<sup>91</sup> L'effet direct des aérosols sur le bilan radiatif terrestre est particulièrement important dans les régions polaires comme l'Arctique. En effet, l'albédo de surface élevé dû à la neige et à la glace augmente considérablement le forçage radiatif des aérosols hautement absorbants comme le carbone noir et cause ainsi un réchauffement additionnel de l'atmosphère. Les effets indirects qui sont associés à la formation des gouttelettes nuageuses et des précipitations sont également très importants dans l'Arctique à cause des faibles

concentrations en aérosols.<sup>92-93</sup> D'ailleurs, de nombreux processus permettent de renforcer l'impact radiatif des aérosols sur le climat arctique. D'abord, le dépôt du carbone noir sur la surface au printemps entraîne évidemment une accélération de la fonte de la glace et de la neige, en plus de causer une augmentation significative de la température de surface.<sup>64, 67-69, 94</sup> La poussière minérale réchauffe également l'atmosphère arctique lorsqu'elle est déposée sous forme de couche au-dessus de la neige ou de la glace.<sup>61</sup> Ensuite, les aérosols absorbants situés dans les basses latitudes peuvent augmenter les gradients de température de l'air méridionale, ce qui réchauffe l'air pendant son transport vers l'Arctique, augmentant ainsi le transport de la chaleur dans la région.<sup>95</sup> Enfin, l'augmentation de l'émissivité aux longues longueurs d'onde des nuages en hiver et au printemps dans l'Arctique en raison des effets des aérosols sur les propriétés des nuages contribue au réchauffement atmosphérique.<sup>96</sup> Ces processus contribuent considérablement au forçage radiatif des aérosols sur le climat non seulement en Arctique, mais aussi à l'échelle mondiale.<sup>81, 97</sup>

### 1.4.2. Brume sèche arctique

Il n'y a pas si longtemps, la plupart des gens du sud percevaient l'Arctique comme un territoire exotique, isolé et éloigné de toutes activités humaines où l'atmosphère est la plus naturelle et la plus propre au monde. Pour plusieurs, l'idée d'une dégradation de l'environnement, par l'effet de la pollution anthropique, était la dernière chose que l'on pourrait s'attendre à voir en Arctique.<sup>98</sup> Après tout, cela n'est guère surprenant compte tenu du fait que les journaux de bord des marins et explorateurs polaires du XIX<sup>e</sup> et XX<sup>e</sup> siècles ne cessaient de parler de la propreté exceptionnelle de l'Arctique, de son air cristallin, de ses paysages magnifiques et de ses glaces scintillantes.<sup>99</sup> Bien que certains explorateurs à la fin du XIX<sup>e</sup> siècle aient aussi rapporté avoir quelquefois remarqué la présence de traces de saleté sur la neige et la glace, les premières preuves de la pollution de l'air en Arctique et les spéculations sur son origine se sont toutefois rapidement tombées dans l'oubli et seule l'image d'un Arctique propre fut conservée. L'Arctique a longtemps été considéré comme un environnement vierge et pur, jusqu'à ce que des pilotes à bord des vols de reconnaissance météorologique, qui survolaient l'Arctique nord-américain dans les années 1950, aient découvert une mystérieuse brume d'origine inconnue qui s'étendait sur plusieurs kilomètres et réduisait significativement la visibilité.<sup>100-101</sup> Le terme *arctic haze*, ou brume sèche arctique en

français, a été introduit pour la première fois dans un rapport, écrit par un jeune officier de l'armée de l'air dénommé M. Mitchell Jr., pour décrire ce phénomène qui était observé chaque hiver et au début du printemps par l'équipage des vols Ptarmigan.<sup>102</sup> Le premier rapport documenté sur la pollution de l'air dans l'Arctique a été publié en 1956, mais il a malheureusement reçu peu d'attention de la part de la communauté scientifique. Il faudra attendre jusqu'aux années 1970 pour que les scientifiques décident très sérieusement de se pencher sur ce sujet.<sup>99</sup>

C'est d'une manière totalement inattendue que les chercheurs Shaw et Wendler ont suscité un regain d'intérêt pour la brume arctique lorsqu'ils enregistrèrent des valeurs de turbidité atmosphérique anormalement élevées à McCall Glacier, en Alaska, aux printemps 1971 et 1972.<sup>103</sup> À ce moment-là, l'origine de la brume était incertaine et certains chercheurs l'attribuaient à des cristaux de glace formés dans les chenaux ou à de la poussière de rivière asséchée, entraînée par le vent.<sup>104</sup> Sa source anthropique a été confirmée qu'à la fin des années 1970 par K. Rahn et ses collègues à travers une analyse de son « empreinte chimique ». <sup>99, 104-</sup>  
<sup>106</sup> Leur découverte changea alors radicalement notre perception du Grand Nord. La présence de la brume arctique démontra de manière frappante la fragilité de cet environnement nordique. Sa présence indiqua aussi que la masse d'air arctique est tout autant exposé à la pollution que les autres masses d'air dans l'hémisphère nord. L'origine anthropique de ce nuage de pollution surprit un grand nombre de scientifiques, puisqu'à l'époque on ne pensait pas que les aérosols pouvaient être transportés à plus de quelques centaines de kilomètres à partir de leurs sources d'émission. Des experts provenant d'Europe et d'Amérique se sont donc réunis au premier symposium sur la chimie de l'air en Arctique à Lillestrom, en Norvège, en 1978, afin d'établir un réseau international d'échantillonnage d'aérosols dans l'Arctique dans le but de mieux comprendre le transport des polluants dans la région.<sup>104, 107</sup> Les premiers résultats sur l'origine de la brume arctique et le premier symposium sur les aérosols en Arctique ont marqué le début d'une révolution dans la recherche sur la pollution atmosphérique en Arctique. Plusieurs campagnes de terrain et des mesures à long terme qui couvrent les 40 dernières années ont été nécessaires pour confirmer sans l'ombre d'un doute les conclusions établies par plusieurs chercheurs selon lesquelles la brume était une forme de pollution d'origine anthropique.<sup>104, 107-109</sup>



**Figure 1-11 Couches de brume arctique observées au nord de l'Alaska à bord d'un avion de recherche de la National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) durant la campagne ARCPAC 2008.**

(Photographie prise par Julie Cozic<sup>110</sup>)

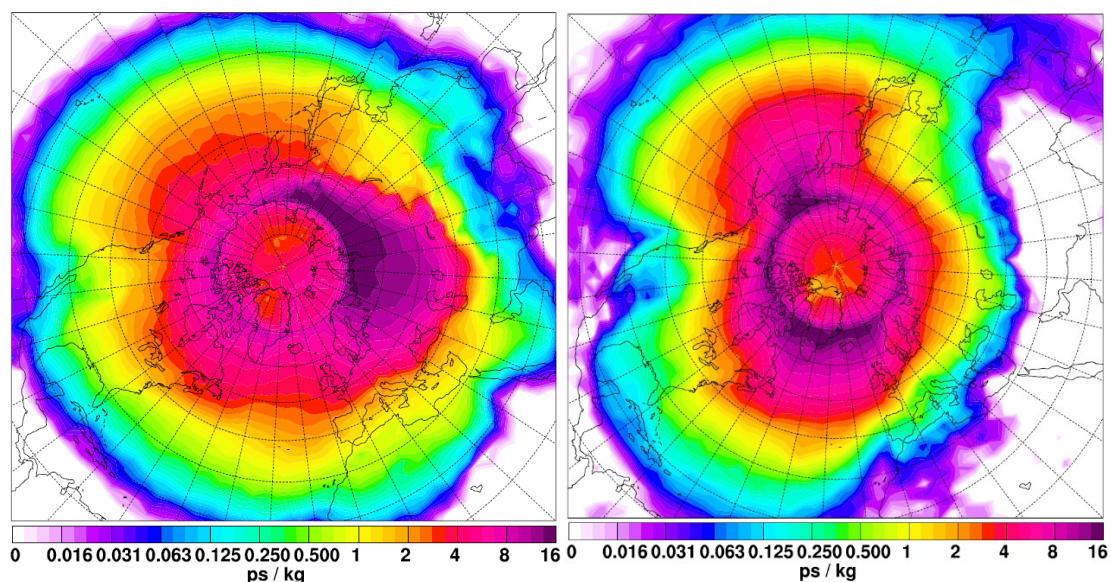
La brume sèche arctique est un phénomène atmosphérique qui se produit annuellement au nord du 60° degré de latitude et résulte de la pollution de l'air. Lorsque le soleil revient au printemps, après la longue nuit polaire, la brume se présente souvent sous la forme de plusieurs couches fines et persistantes d'aspect brun-rougeâtre qui peuvent atteindre jusqu'à la tropopause et provoquer une visibilité réduite au-dessus de l'horizon (Figure 1-11). De plus, elle ne produit aucun des phénomènes optiques auxquels on pourrait s'attendre à voir si elle était uniquement composée de cristaux de glace. Elle se distingue aussi des autres brumes traditionnellement observées aux plus basses latitudes par sa durée plus longue dans l'atmosphère. La brume sèche se compose typiquement d'un mélange varié de sulfate et de matière organique particulaire et, dans une moindre mesure, d'ammonium, de nitrate, de poussière minérale, de sel marin et de carbone noir. Elle est souvent accompagnée d'une concentration accrue de polluants gazeux, plus particulièrement des précurseurs d'ozone, tels que les oxydes d'azote ( $\text{NO}_x$ ) et les composés organiques volatils (COV). Elle est également riche en différents métaux lourds, ce qui a permis l'identification de certaines sources industrielles.<sup>92, 100, 107</sup> Les particules d'aérosol qui forment la brume arctique sont bien vieilles

avec un diamètre centré entre 100 et 300 nm typiques du mode accumulation. Cette gamme de tailles particulières est très efficace pour la diffusion du rayonnement solaire, car la surface moyenne des particules en mode accumulation est proche de l'efficacité maximale de la diffusion de Mie. La brume absorbe aussi faiblement le rayonnement à cause du carbone noir. Une forte diffusion et une faible absorption du rayonnement solaire par les aérosols de la brume arctique aboutissent à une réduction notable de la visibilité à quelques kilomètres de distance ou moins et ont des impacts importants sur le climat polaire via les effets direct, indirect et semi-direct. Une des caractéristiques les plus frappantes de la brume arctique est sa forte variation saisonnière avec une concentration maximale en hiver et au début du printemps et minimale pendant l'été et l'automne.<sup>107</sup>

### 1.4.3. Transport des aérosols en Arctique

La plupart des polluants atmosphériques responsables de la formation de la brume arctique ont été transportés sur de grandes distances à partir des latitudes méridionales étant donné que les sources d'émission locales sont, pour l'instant, plutôt faibles et surtout situées à la limite du cercle arctique. La pollution entre dans l'Arctique par différentes voies qui sont déterminées par la persistance et le caractère saisonnier de la circulation atmosphérique à grande échelle. Pour commencer, il faut savoir que la basse troposphère de l'Arctique est séparée du reste de l'atmosphère terrestre par une barrière de transport, connue sous le nom du « front arctique », de « dôme arctique » ou de « dôme polaire », qui est formé par des surfaces de température potentielle constante (isentropes). La taille et l'emplacement du front arctique sont complexes et dictés par les conditions météorologiques mondiales avec des variations importantes selon les saisons. Au cours de l'été, le front arctique se situe habituellement au nord du 70° N, tandis qu'il s'étend pendant l'hiver plus au sud jusqu'à 40° N. Le front arctique est également asymétrique par zones en s'étendant beaucoup plus au sud sur l'Eurasie pendant l'hiver, ce qui en fait la principale source de la brume sèche.<sup>111</sup> Comme le transport dans l'Arctique tend à se produire à une température potentielle constante, le dôme polaire qui enveloppe l'air froid et dense de l'Arctique empêche donc le transport des masses d'air du sud dans la basse troposphère de l'Arctique et les force plutôt à remonter au-dessus du dôme jusqu'à la haute troposphère. Le transport isentropique ne peut se faire que si la région des sources d'émission possède les mêmes basses températures potentielles que la région polaire,

ce qui fait que la basse troposphère de l'Arctique n'est accessible qu'à la pollution issue des régions plus froides. En d'autres mots, l'expansion du front arctique en hiver permet d'inclure les sources d'émission d'aérosol dans la masse d'air arctique, favorisant sous ces conditions le transport des polluants sur de très longues distances. C'est pourquoi l'atmosphère en Arctique est plus vulnérable au transport isentropique en hiver qu'en été.<sup>92, 100, 107, 112-113</sup>



**Figure 1-12 Sensibilité potentielle aux émissions (PES) de la masse d'air, qui passe au moins 5 jours dans l'Arctique, intégrée au cours des 30 derniers jours avant son arrivée en Arctique en hiver (à gauche) et en été (à droite). PES est appliquée pour des particules qui atteignent une altitude minimale inférieure à 1000 m. Les valeurs de PES sont exprimées en ps/kg et sont proportionnelles au temps de résidence des particules.**

(Graphiques tirés de Stohl (2006)<sup>112</sup>)

En hiver, la pollution provenant des régions froides du nord de l'Eurasie est transportée directement dans la basse troposphère. Les masses d'air quittant les côtes de l'Asie de l'Est et de l'Amérique du Nord durant la saison froide sont trop chaudes et humides pour pénétrer directement dans le dôme polaire. Elles sont donc forcées de monter jusqu'à la moyenne et haute troposphère.<sup>92</sup> La combinaison d'un transport isentropique rapide des panaches de polluants des basses latitudes vers le pôle et de fortes inversions de température à la surface favorise la formation de la brume arctique. Les conditions sèches et froides de l'hiver polaire, qui inhibent l'élimination des aérosols par dépôt humide, et la suppression du mélange vertical entre les couches atmosphériques, en raison de l'inversion de température et l'absence du rayonnement solaire, offrent des conditions propices pour piéger les aérosols et les accumuler

pendant l'hiver jusqu'au début du printemps. Les processus d'élimination inefficaces et une stabilisation de la basse troposphère permettent également aux particules de parcourir de grandes distances. En retraçant la direction des vents qui transportent les polluants dans l'Arctique, les climatologues ont pu déterminer qu'une grande partie de la pollution atmosphérique qui débarque en Arctique provient principalement des régions du nord de l'Europe et de la Russie, autrement dit au nord du front arctique comme démontré à la Figure 1-12. De nos jours, l'Eurasie demeure toujours la principale source de la brume arctique aux basses altitudes, malgré une augmentation des émissions anthropiques provenant de l'Asie de l'Est, au cours des dernières années, due à une croissance économique rapide et à une hausse de la consommation d'énergie. En Amérique du Nord et en Asie de l'Est, la pollution de l'air est surtout produite sur la côte est du continent et entraînée par les vents vers l'océan Atlantique ou Pacifique où la plupart des polluants seront emportés par les tempêtes océaniques. Cependant, en Europe et en Russie, les vents soufflent fortement vers le nord, surtout en hiver, et au-dessus de la terre ferme.<sup>114</sup> Le transport à longue distance des aérosols à partir de sources lointaines persiste jusqu'à la fin du printemps.

Durant l'été, selon la Figure 1-13, l'augmentation des précipitations, le retour du mélange vertical dû au réchauffement solaire (convection) et les changements dans les modèles de transport éliminent les aérosols existants et ralentissent voire bloquent le transport des basses latitudes vers l'Arctique. Ainsi, bien qu'en beaucoup plus faible concentration, les aérosols en période estivale proviennent davantage de sources locales et sont composés d'une distribution en taille dominée par des particules en modes de nucléation et Aitken.<sup>115-116</sup> Les aérosols ne sont pas uniquement transportés en Arctique, mais ils peuvent aussi se former *in situ* selon des processus de conversion gaz-particule dans la basse troposphère. Cela est rendu possible notamment grâce à la sursaturation des vapeurs de condensation, qui augmente le taux de nucléation, et à un faible puits de condensation, c'est-à-dire une diminution de la surface des particules où les molécules peuvent se condenser.<sup>117-118</sup> L'oxydation du diméthylsulfure (DMS) émis à la surface de l'océan en acides sulfurique et méthanesulfonique (MSA), ainsi que les émissions d'ammoniac provenant de colonies d'oiseaux de mer contribuent à la formation de nouvelles particules et à leur grossissement dans l'Arctique. Les émissions d'embruns marins constituent également une source importante d'aérosol en été.<sup>115,</sup>



<sup>119</sup> Il est à noter que le transport à partir des basses latitudes persiste encore, mais beaucoup moins efficacement, et se concentre surtout en haute altitude dans la troposphère. Un exemple typique est la suie ou le carbone noir provenant des épisodes de feux de végétation souvent observés dans l'hémisphère Nord à la fin du printemps et durant l'été.<sup>120-122</sup> Les feux de forêt sont quelquefois connus pour relâcher directement dans l'atmosphère de grandes quantités de carbone à très hautes altitudes.<sup>123-125</sup> Les émissions de feux de forêt, qui sont produites au sud du front arctique, atteignent ensuite l'Arctique par advection en suivant les surfaces de température potentielle constante. Il s'agit du même principal mécanisme de transport par lequel les émissions issues de l'Amérique de Nord et de l'Asie du Sud-Est se rendent en Arctique.<sup>92, 112</sup>

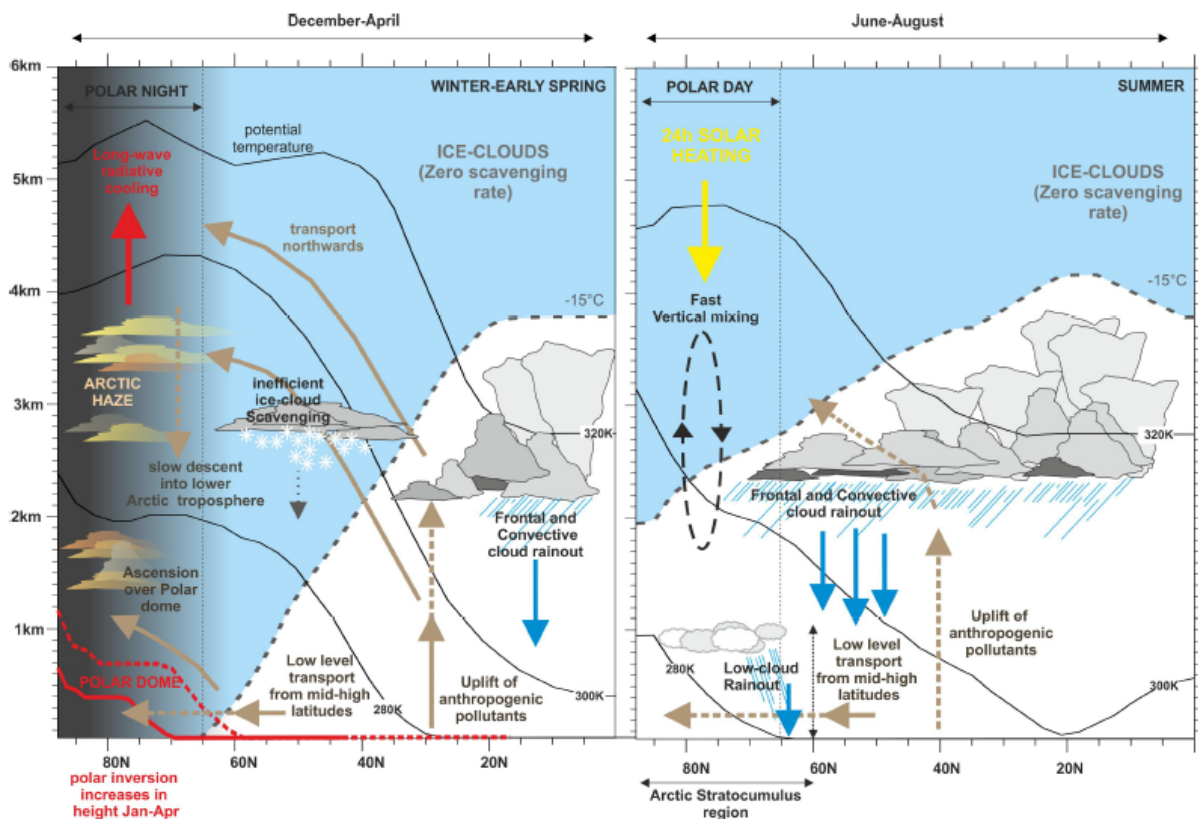


Figure 1-13 Schéma démontrant les principales voies de transport et les mécanismes d'élimination des aérosols dans l'Arctique en hiver-printemps (à gauche) et en été (à droite). Les voies de transport sont représentées sous forme de flèches brunes où les lignes pointillées indiquent un faible transport. Les dépôts humides sont marqués par des flèches bleues. Les phénomènes météorologiques sont démontrés avec des lignes noires. Les processus radiatifs à longues longueurs d'onde sont représentés en rouge, tandis que ceux à courtes longueurs d'onde sont en jaune.

(Shémas tirés de Browse (2012)<sup>82</sup>)

Les niveaux de pollution atmosphérique en Arctique sont normalement 10 à 20 fois supérieures à ceux de l'Antarctique et 10 fois supérieurs à ceux des autres régions non industrielles de l'Amérique de Nord.<sup>126</sup> Les niveaux de brume arctique les plus élevés jamais enregistrés ont été recensés dans les années 1980 et au début des années 1990 depuis que les mesures ont débuté à la fin des années 1970. Par la suite, les niveaux de pollution en Arctique ont diminué jusqu'à la fin des années 1990, principalement en raison de la chute de l'Union soviétique, de l'introduction de technologies plus propres et d'une restriction des normes environnementales sur les émissions industrielles aux États-Unis et en Europe.<sup>127</sup> L'effet net des aérosols anthropogéniques a été de refroidir l'Arctique par le biais des interactions aérosol-radiation. Ainsi, en plus de l'augmentation des gaz à effet de serre, la réduction des émissions d'aérosol au cours des dernières décennies dans les pays développés entourant l'Arctique, et plus particulièrement en Europe, aurait contribué à l'accélération du réchauffement climatique.<sup>128-129</sup> Cela signifie que les aérosols ont dissimulé une partie du réchauffement climatique causé par l'augmentation des gaz à effet de serre durant les dernières années. Néanmoins, de récentes données indiquent que les concentrations d'aérosols pourraient augmenter de nouveau dans l'Arctique dans la prochaine décennie. Bien que les émissions de soufre aient diminué en Europe et en Russie, les émissions provenant de l'Asie du Sud et de l'Est ont au contraire considérablement augmenté au cours des dernières années.<sup>91, 130</sup> Alors que la banquise qui ne cesse de reculer, les émissions locales d'aérosols en Arctique telles que le transport maritime et l'exploitation des ressources naturelles risquent également d'augmenter dans la région dans les années à venir. Sans oublier que l'industrialisation et la multiplication des feux de forêt risquent d'augmenter le transport des aérosols en Arctique comme le carbone noir.<sup>131</sup> Les études sur la brume arctique se sont dernièrement intensifiées en raison des préoccupations relatives sur le rôle du carbone noir dans le réchauffement mondial.<sup>132</sup> Bien que la brume sèche soit une caractéristique importante de l'Arctique, sa composition et ses sources demeurent encore incertaines, et ce, plus particulièrement en hiver.<sup>133</sup> La brume arctique fait actuellement l'objet de nombreuses études en raison de son potentiel à changer le bilan radiatif terrestre, à affecter la visibilité en plus d'être une source importante de contaminants pour l'écosystème arctique.<sup>107</sup>

### 1.4.4. Eureka

Effectuer des mesures atmosphériques à long terme dans les régions éloignées comme le Haut-Arctique représente un véritable défi pour les scientifiques en raison de l'éloignement du lieu, des difficultés d'accès au site, des coûts élevés de transport, d'électricité et de logement, des faibles concentrations d'aérosol retrouvées dans les environnements vierges et des conditions météorologiques extrêmes.<sup>134</sup> La collaboration étroite entre les différents organismes scientifiques et gouvernementaux a évidemment été plus que cruciale pour surmonter ces nombreux obstacles et mieux comprendre ce qui change en Arctique, pourquoi y a-t-il des changements radicaux dans la région et quelles seront les conséquences de ces changements à l'avenir. De cette collaboration est née l'idée d'établir plusieurs stations de surveillance un peu partout en Arctique qui mesureraient en continu et à long terme la concentration et les caractéristiques des aérosols dans l'atmosphère.<sup>46</sup> Bien que l'étude des aérosols en Arctique ait une longue histoire, les mesures *in situ* des propriétés des aérosols sur le terrain n'ont réellement débuté qu'à partir de la deuxième moitié des années 1970 à Barrow en Alaska et, plus tard, sur d'autres sites à travers l'Arctique. À ce jour, certaines de ces stations de surveillance ont déjà recueilli des données pour une décennie ou plus.

Les données collectées jusqu'à maintenant par les réseaux de stations de surveillance ont permis de fournir des informations vitales sur la chimie, la microphysique et les propriétés optiques des aérosols en plus de permettre le développement de climatologies, de tendances et de modèles pour les aérosols. Les multiples publications qui se basent sur ces précieuses données ont permis des avancées scientifiques colossales sur les sources, le transport et les processus qui influencent les propriétés des aérosols en Arctique. Comprendre les propriétés optiques des aérosols en particulier est essentiel afin de mieux saisir le rôle des aérosols dans le réchauffement de l'Arctique.<sup>46, 135</sup> Les données recueillies sur les aérosols dans le Haut-Arctique canadien proviennent de deux stations de surveillance soient Alert et Eureka. Alert est situé dans le territoire du Nunavut, à l'extrémité nord de l'île d'Ellesmere, à seulement quelques centaines de kilomètres du pôle Nord. La station est la plus au nord de la planète et mesure sur une base régulière les concentrations et les propriétés optiques des aérosols depuis la fin des années 1980.<sup>135-136</sup>

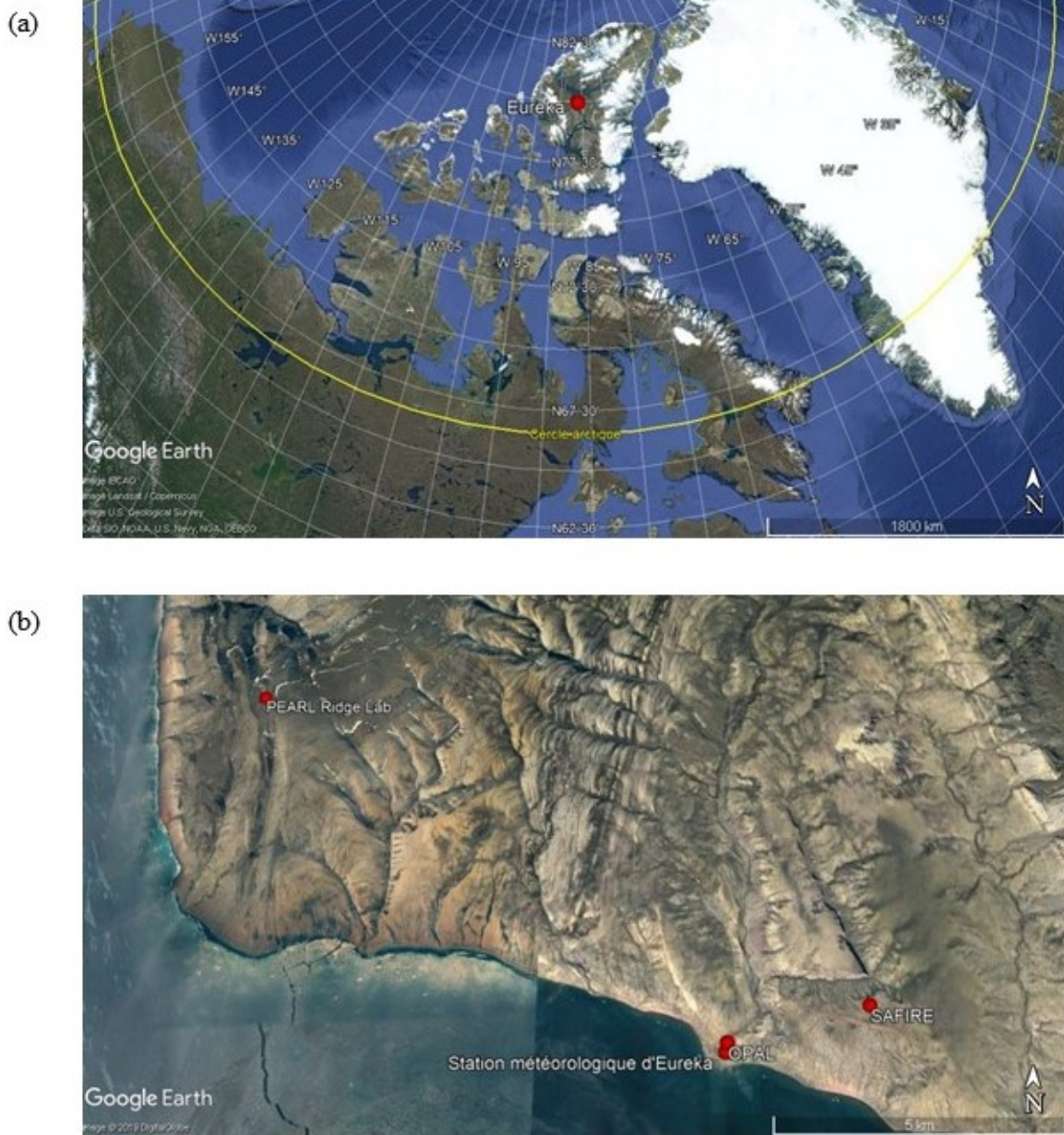


Figure 1-14 Carte de l'archipel arctique canadien montrant le site d'Eureka (a) et ses environs (b).  
(Images satellites prises par Google Earth)

La caractérisation et la surveillance continue des aérosols atmosphériques à Eureka (80°N, 86°O) n'en sont toutefois qu'à ses débuts. Eureka est une petite base de recherche située dans la péninsule de Fosheim, à l'ouest de l'île d'Ellesmere, dans la région de Qikiqtaaluk, au nord de l'archipel arctique canadien (Figure 1-14). Bien qu'il soit situé dans une région dite semi-aride, le site est sans aucun doute un des plus beaux endroits de

l'Arctique. L'île d'Ellesmere est en effet réputée pour ses montagnes majestueuses, majoritairement englacées, découpées par les fjords et plongées dans des banquises de glace. À quelques kilomètres au nord d'Eureka, Blacktop Ridge s'élève à une hauteur de 825 mètres. Cape Hare atteint 550 mètres de hauteur et Sawtooth Ridge, localisé à 65 kilomètres à l'est, se dresse à une hauteur de près de 1200 mètres. Le site est également entouré de petites collines et se trouve à proximité de deux rivières qui promettent une eau douce en été.<sup>137</sup>

Eureka est la troisième communauté de recherche la plus nordique au monde et la deuxième la plus au nord du Canada après Alert. Quoiqu'elle soit située au sud de Alert, elle enregistre les plus faibles taux de précipitations et les plus basses températures annuelles au pays.<sup>138</sup> Eureka est classé comme un désert arctique et les rares précipitations se présentent la plupart du temps sous forme de neige. La température se maintient normalement au-dessous de zéro pendant la majeure partie de l'année. Le mois le plus chaud de l'année est le mois de juillet avec une température moyenne quotidienne de 6 °C. Février marque le mois le plus froid avec une température moyenne quotidienne de -37 °C sans compter le refroidissement éolien. Chaque année, le soleil brille 24 heures par jour du 10 avril au 29 août et la noirceur totale s'installe en permanence de la mi-octobre à la fin février. Malgré les hivers rigoureux et un climat très sec, cela n'empêche pas Eureka d'être surnommé le « jardin de l'Arctique ». On retrouve effectivement une végétation assez abondante, composée de plantes et de mousses exclusivement, et une grande diversité de mammifères et d'oiseaux migrateurs qui sont plus importants que partout ailleurs dans le Haut-Arctique. Les communautés humaines les plus proches sont Alert et Grise Fiord, une communauté inuite située au sud de l'île, qui sont séparés tous les deux d'Eureka par plusieurs centaines de kilomètres.<sup>137</sup> Le site, sans route et voie navigable, n'est accessible que par voie aérienne le reste du temps. Par conséquent, le matériel scientifique, le personnel, les denrées alimentaires et toutes autres fournitures arrivent surtout par avion.

La base de recherche comprend un aéroport où l'on retrouve un petit détachement militaire appelé « Fort Eureka », la station météorologique d'Eureka et le laboratoire de recherche atmosphérique en environnement polaire (*Polar Environment Atmospheric Research Laboratory* ou PEARL). Anciennement connu sous le nom de l'observatoire arctique d'ozone stratosphérique (*Arctic Stratospheric Ozone Observatory* ou AStrO), PEARL



comprend trois laboratoires répartis autour d'Eureka : le bâtiment principale communément appelé PEARL Ridge Lab ou simplement Ridge Lab, le laboratoire auxiliaire à zéro altitude de PEARL (*Zero Altitude PEARL Auxiliary Laboratory* ou ØPAL) qui a été construit près de la station météorologique en 2005 et SAFIRE (*Surface and Atmospheric Flux, Irradiance and Radiation Extension*) situé non loin de l'aéroport. PEARL Ridge Lab est perché au-dessus d'une montagne à 610 mètres au-dessus du niveau de la mer et à 11,6 km à l'ouest d'Eureka. Une photo de la bâtisse principale est affichée à la Figure 1-15. Depuis 2005, ce laboratoire privé de recherche est maintenu par un regroupement de chercheurs universitaires de haut niveau et d'organismes gouvernementaux du nom du Réseau canadien pour la détection des changements atmosphériques (*Canadian Network for Detection of Atmospheric Change* ou CANDAC). Au cours des dernières années, PEARL est devenu une station de recherche polaire de classe mondiale dotée d'un large éventail d'instruments permettant de mesurer les propriétés de l'atmosphère à partir du sol jusqu'à 100 kilomètres d'altitude. Le laboratoire appuie la recherche dans les domaines aussi variés que la qualité de l'air, la chimie atmosphérique et le réchauffement climatique.



**Figure 1-15** Photo de la façade nord du bâtiment principal du laboratoire de recherche atmosphérique en environnement polaire (PEARL Ridge Lab).

(Photographie prise par l'auteur)

L'observatoire PEARL à Eureka est un site de choix pour réaliser des mesures atmosphériques dans le Haut-Arctique canadien, car il offre des conditions météorologiques

idéales pour plusieurs instruments (p. ex. un nombre d'heures d'ensoleillement optimales et un ciel souvent dégagé), l'accès aux satellites géostationnaires pour les communications et le transfert de données, les nombreux survols de satellites en orbite au-dessus du pôle Nord et l'accès à une piste d'atterrissage, à de l'électricité, à de la nourriture, à un lieu d'hébergement et à tout autre support logistique. Le seul désavantage majeur est le transport, c'est-à-dire le coût d'accès au site.<sup>134, 137</sup> De surcroît, le bâtiment est alimenté par des génératrices placées près de la station météorologique via un câble électrique de 15 km de long, ce qui permet de minimiser son exposition à la pollution de l'air locale. En cas de panne de courant, PEARL dispose d'une génératrice de secours sur place pour alimenter les instruments scientifiques. L'emplacement unique de PEARL permet non seulement une minimisation de la pollution provenant d'Eureka, mais il offre également des conditions météorologiques locales souvent bien différentes de celles de la station météorologique d'Eureka et des autres sites en Arctique.<sup>134</sup> Entre autres, à certaines périodes de l'année, l'observatoire situé au sommet d'une montagne se maintient quelquefois dans la haute troposphère, où les propriétés des aérosols sont souvent bien différentes de celles dans la basse troposphère, qui est fortement influencée par les échanges thermiques avec la surface terrestre.<sup>139-140</sup> La partie supérieure de la troposphère, souvent appelée la troposphère libre, est plus représentative de l'atmosphère globale, puisque le temps de résidence des aérosols peut s'étendre sur plusieurs semaines. Ainsi, les aérosols qui sont transportés dans cette couche atmosphérique ont un impact plus grand sur le climat. Les propriétés des aérosols mesurées à haute altitude deviennent aussi plus utiles pour la validation par satellite que celles mesurées à proximité de la surface terrestre. Enfin, les stations en haute altitude fournissent des informations plus approfondies et sur une plus longue période que les mesures effectuées à bord des avions.<sup>135, 141-142</sup>

### 1.5. Instrumentation

À ce jour, les instruments scientifiques les plus couramment utilisés pour l'analyse quantitative des aérosols atmosphériques dans des lieux aussi éloignés que le Haut-Arctique comprennent le compteur optique de particules et des granulomètres qui déterminent précisément la taille et la concentration des particules dans l'air.<sup>116, 143</sup> L'aethalomètre et le néphélomètre sont également des instruments largement déployés sur le terrain pour mesurer respectivement les propriétés d'absorption et de diffusion des aérosols.<sup>135</sup> L'aethalomètre mesure le rayonnement absorbé par des particules prélevées en continu sur un filtre, ce qui permet de déduire la teneur équivalente de carbone noir dans l'atmosphère. Le néphélomètre mesure en temps réel la lumière diffusée par les particules en suspension à un angle de 90° par rapport à la source. Lorsque la taille de l'instrument ou ses conditions d'opération ne le permettent pas d'être utilisé sur le terrain, les impacteurs et les filtres sont alors utilisés pour collecter les particules qui seront ensuite analysées en laboratoire. Les techniques hors lignes sont caractérisées par des processus distincts d'échantillonnage et de transport qui précèdent l'analyse. Cependant, ces techniques souffrent d'importants artéfacts associés, entre autres, à l'évaporation des espèces volatiles qui peuvent se produire autant durant l'échantillonnage, le stockage, que durant le transport et ainsi causer des erreurs majeures. De plus, la contamination des échantillons dans les laboratoires ou lors de la manipulation des échantillons sur le terrain est toujours une très grande préoccupation.

Le développement de nouvelles techniques de mesure à la fine pointe de la technologie depuis la fin des années 1990 a permis à de nombreuses stations de surveillance d'être équipées d'instruments robustes capables de caractériser en temps réel les propriétés physiques et chimiques des aérosols avec une résolution temporelle raisonnable. En plus de remédier au désavantage des techniques analytiques hors lignes, la sensibilité des instruments s'est aussi grandement améliorée, permettant ainsi d'avoir des limites de détection plus basses, une résolution temporelle plus élevée et une meilleure ségrégation granulométrique des particules dans l'air.<sup>144</sup> L'arrivée sur le marché du spectromètre de masse d'aérosols (*Aerosol Mass Spectrometer* ou AMS) et du spectromètre de masse en temps de vol d'aérosols (*Aerosol Time-Of-Flight Mass Spectrometer* ou ATOFMS) au cours des dernières années a apporté des progrès substantiels dans l'analyse en ligne et *in situ* de la composition chimique des



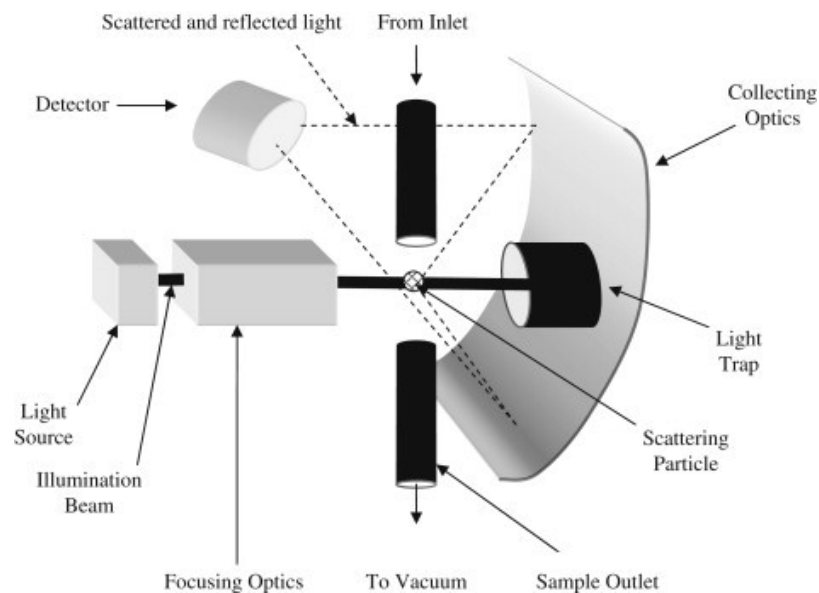
aérosols.<sup>145-146</sup> Toutefois, ces instruments ne sont pas encore employés régulièrement sur le terrain pour une surveillance à long terme en raison de leur coût élevé et de leur manque d'autonomie lors des mesures.

### 1.5.1. *Optical Particle Counter (OPC)*

Le compteur optique de particules (*Optical Particle Sizer* ou OPC), comme son nom l'indique, est utilisé pour compter en temps réel les particules en suspension dans l'air et déterminer leurs tailles. Un aspect important de l'OPC repose sur le fait qu'il s'agit d'un instrument de comptage de particules uniques, c'est-à-dire qu'une seule particule est comptée à la fois. Les échantillons d'aérosol entrent dans le système sous la forme d'un mince flux de particules entourées d'air filtré. Le débit de ces deux flux d'air (débits d'air de l'échantillon et de gaine) est contrôlé soigneusement pour éviter les turbulences et les pertes. Les débits d'air sont aussi un paramètre très important pour déterminer la vitesse à laquelle les particules pénètrent dans le volume optique ou volume de diffusion et pour ainsi convertir le nombre de particules en concentration de particules (nombre de particules/cm<sup>3</sup>). Les erreurs de coïncidence surviennent lorsque deux particules ou plus se trouvent simultanément dans le volume optique, produisant alors un signal biaisé. Le signal parasite conduit à une sous-estimation de la concentration en nombre de particules et à une surestimation de la taille des particules mesurées dans l'échantillon. Les débits d'air sont ajustés en conséquence pour s'assurer qu'une seule particule est illuminée à la fois dans le volume optique et diffuse la lumière vers le détecteur. Lorsque les concentrations d'aérosol sont très élevées (> 10<sup>4</sup>/cm<sup>3</sup>), la réduction du débit d'air est insuffisante pour minimiser ces erreurs de coïncidence. Ainsi, la dilution de l'échantillon d'aérosol avant son introduction dans l'instrument devient alors plus que nécessaire pour qu'une seule particule traverse le faisceau laser à la fois.<sup>147</sup>

La technique de mesure se base sur le principe de la diffusion de la lumière par les particules suivant la théorie de Mie. Lorsqu'une particule d'aérosol passe devant un faisceau laser, une certaine quantité de lumière est diffusée par la particule et dirigée vers un détecteur (photodiode) à l'aide d'un miroir comme illustré à la Figure 1-16. La concentration en nombre correspondant à chaque taille de particules est simplement déterminée à partir du nombre d'impulsions de lumière diffusée se rendant au détecteur. La taille de chacune des particules

est, quant à elle, estimée en comparant les intensités de la lumière diffusée mesurées au détecteur avec une courbe d'étalonnage obtenue à partir d'un ensemble de particules sphériques et monodisperses de diamètre connu, le plus souvent une suspension de microparticules de polystyrène.<sup>148</sup> Cependant, les particules d'aérosol ont en pratique une forme, des indices de réfraction et une composition bien différents de ceux des particules de référence. Sans correction, les compteurs optiques de particules ne tiennent pas compte de ces différentes propriétés des aérosols. Ainsi, les erreurs sur l'estimation de la taille peuvent être significative lorsque l'indice de réfraction des particules d'aérosol est différent ou inconnu.<sup>147</sup> C'est pourquoi la taille des particules est plutôt rapportée en termes de diamètre optique et non de diamètre physique réel des particules mesurées, ce qui peut souvent mener à une confusion dans l'interprétation des distributions en taille et des concentrations d'aérosols obtenues par l'OPC.<sup>149</sup>



**Figure 1-16 Composantes de base d'un compteur optique de particules (OPC).**

(Schéma provenant de Welker (2012)<sup>149</sup>)

La plus petite taille de particule pouvant être détectée par un tel instrument varie d'un modèle à un autre, mais se situe généralement entre 0.1 et 0.3  $\mu\text{m}$ . Les particules plus petites que cette taille diffusent peu de lumière, ce qui les rend difficilement détectables avec ce type d'instrument. Malgré tout, l'instrument est capable de couvrir une large gamme de tailles de particules pouvant aller jusqu'à 20  $\mu\text{m}$ .<sup>150</sup> L'OPC trouve de nombreuses applications aussi

bien dans la recherche sur les aérosols et les études de la pollution atmosphérique que dans la surveillance de la qualité de l'air intérieur et extérieur. Plusieurs compteurs optiques de particules sont en vente sur le marché en petit format portable. Ils sont considérés comme bien plus abordables que le granulomètre aérodynamique qui est décrit un peu plus loin dans le texte.<sup>151</sup> Ils sont également faciles à utiliser et peuvent fonctionner sans supervision sur de longues périodes.<sup>152</sup>

### 1.5.2. *Aerodynamic Particle Sizer (APS)*

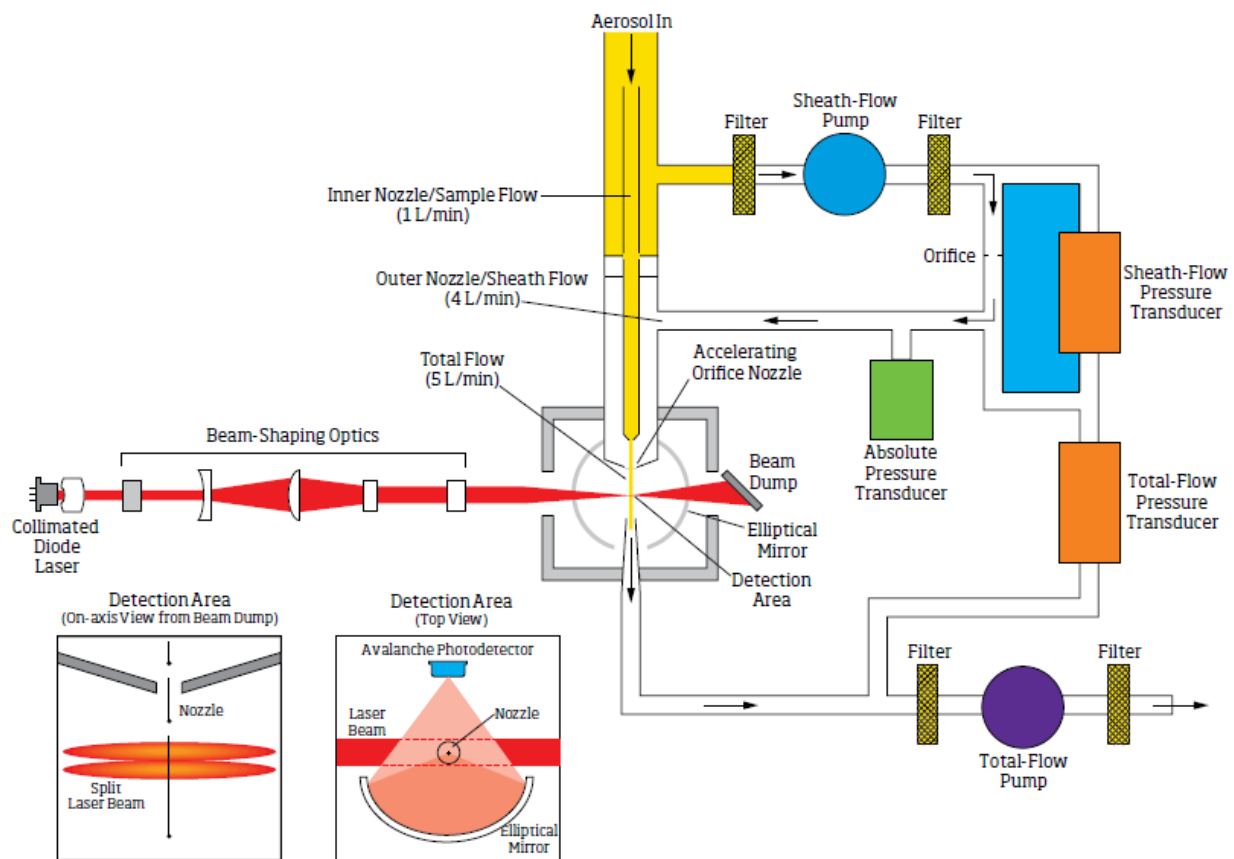
Le granulomètre aérodynamique (*Aerodynamic Particle Sizer* ou APS) est un spectromètre bien connu qui utilise le principe de l'inertie pour mesurer en temps réel la taille aérodynamique des aérosols aéroportés de 0.5 à 20  $\mu\text{m}$ . La précision, l'exactitude et la rapidité des mesures aérodynamiques en font un instrument robuste pour ceux qui souhaitent étudier les aérosols à la fois sur le terrain et en laboratoire.<sup>153</sup> Contrairement à l'OPC mentionné ci-dessus, la performance de cet instrument est bien documentée dans la littérature scientifique. L'APS classe les particules en fonction de leur diamètre aérodynamique qui est une propriété très utile pour déterminer le transport et le dépôt des particules de taille supérieure à 0.5  $\mu\text{m}$ . Dans les études où le dépôt par voie respiratoire ou le transport dans l'atmosphère doivent être évalués, pouvoir mesurer le diamètre aérodynamique constitue alors un véritable avantage comparativement aux techniques purement optiques comme l'OPC.<sup>154-155</sup> De plus, le diamètre aérodynamique tient compte de la forme de la particule et il demeure indépendant de l'indice de réfraction ou de la diffusion de Mie.<sup>156</sup>

L'APS a été largement utilisé pour caractériser les aérosols ambiants et intérieurs dans le but de surveiller la qualité de l'air, les aérosols issus de la combustion dans le cadre d'étude atmosphérique, et pour tester de nouveaux dispositifs d'inhalation développés par l'industrie pharmaceutique. L'APS a aussi souvent été utilisé pour estimer le degré de pénétration des particules en fonction de leur taille à travers des filtres afin de tester leur efficacité.<sup>154</sup> Quelques problèmes de mesure ont été rapportés dans le passé dans certains modèles d'APS incluant un changement de taille pour les aérosols de forme liquide, un nombre élevé de cas de coïncidence (qui sera discuté un peu plus bas) et des erreurs de taille pour un nombre de Reynolds élevé.<sup>151, 154</sup> Le nombre de Reynolds (Re) est un paramètre aérodynamique très utile

pour caractériser le comportement d'un fluide dans un tube ou en présence d'obstacles comme des aérosols. Les conditions d'écoulement sont laminares pour un  $Re < 2000$  et turbulentes pour un  $Re > 4000$ . Il s'agit d'un nombre sans dimension qui représente le rapport entre les forces d'inertie et les forces visqueuses :

$$Re = \frac{\rho V d}{\eta}$$

où  $\rho$  est la masse volumique du fluide,  $\eta$  la viscosité du fluide,  $V$  la vitesse du fluide et  $d$  le diamètre du tube ou de la particule.<sup>1</sup> Ces problèmes avec les précédentes versions du spectromètre ont été, bien entendu, résolus avec l'arrivée des nouveaux modèles sur le marché.<sup>154</sup>



**Figure 1-17** Diagramme d'un granulomètre aérodynamique (APS) et de ses composants.

(Schéma tiré d'une brochure de TSI Incorporated sur le fonctionnement de l'APS<sup>153</sup>)

Dans cet instrument, une fraction des aérosols échantillonnés passe par un tube d'entrée interne à un débit de 1 L/min avant d'atteindre la chambre de détection, tandis que

l'autre fraction de l'échantillon d'air est filtrée pour produire un flux en gaine de 4 L/min (Figure 1-17). Les deux flux d'air générés se rejoignent ensuite à travers un orifice d'accélération où les particules d'aérosol sont accélérées à un débit d'air total de 5 L/min. Le flux exempt de particule assure également de maintenir le flux d'aérosol au centre de l'orifice d'accélération.<sup>157</sup> Lorsqu'elles sortent de l'orifice, les particules d'aérosol emportées par le flux d'air accélèrent à des vitesses différentes qui dépendent de l'aire de surface et de la masse de la particule. Les particules ont ainsi une vitesse qui est déterminée par leur diamètre aérodynamique.<sup>158</sup> Le diamètre aérodynamique est défini comme le diamètre d'une sphère de masse volumique standard égale à 1 ayant une vitesse de décantation ou de sédimentation, ou encore une vitesse terminale de chute, similaire à celle de la particule d'intérêt dans un fluide gazeux au repos. Il s'agit d'un des paramètres de taille les plus importants dans l'étude des aérosols, car il décrit précisément le comportement d'une dispersion de particules en suspension dans l'air. Les particules qui présentent le même comportement dans l'air ont des diamètres aérodynamiques identiques, quelles que soient la taille, la géométrie, la masse volumique ou la composition chimique de la particule étudiée. La relation entre le diamètre aérodynamique  $D_a$  et le diamètre géométrique ou physique  $D_p$  d'une particule d'aérosol de forme sphérique détectée par l'APS est donnée ci-dessous où  $\rho_o$  est la masse volumique unitaire exprimée en  $\text{g/cm}^3$ <sup>156, 159</sup> :

$$D_p = D_a \sqrt{\frac{\rho_o}{\rho}}$$

L'APS quantifie la taille aérodynamique et le nombre de chacune des particules en mesurant leur temps de vol (*Time-Of-Flight* ou TOF) ou le temps qu'elles prennent pour traverser deux faisceaux laser placés parallèlement l'une de l'autre et perpendiculairement à la trajectoire du flux d'aérosol. Les particules qui croisent ces faisceaux laser dispersent la lumière qui est captée par un miroir elliptique orienté à 90° de l'axe des faisceaux laser. La lumière diffusée est finalement redirigée et focalisée vers un photodétecteur où les impulsions de lumière diffusée sont converties en impulsions électriques. Une particule d'aérosol qui traverse les deux faisceaux laser qui se chevauchent produit un signal à deux crêtes à savoir deux impulsions de lumière. L'intervalle de temps qui s'écoule entre les deux impulsions,

autrement dit la distance entre le maximum des deux crêtes du signal de diffusion, est lié à la vitesse et donc au diamètre aérodynamique de la particule. Les particules d'aérosol, dont le diamètre aérodynamique est petit, accélèrent plus rapidement que les particules de plus grande taille à cause de l'inertie, ce qui réduit significativement leur temps de vol et donc la distance entre les deux crêtes du signal.<sup>153-154, 158</sup> La conversion du temps de vol en diamètre aérodynamique s'effectue par le biais d'une courbe d'étalonnage en utilisant des particules sphériques et monodisperses à base de polystyrène. Le principe du TOF de l'APS n'est nullement influencé par les ambiguïtés dans la relation entre le signal détecté et la taille particulaire, comparativement à l'OPC, ce qui signifie que la courbe d'étalonnage a une réponse monotone sur toute la plage de taille.<sup>160</sup> Toutefois, les effets de la densité et de la forme des particules sur la relation entre le diamètre aérodynamique et le TOF sont très complexes, ce qui ajoute une certaine incertitude quant aux mesures de taille.<sup>154</sup> L'APS mesure aussi la hauteur de l'impulsion de lumière afin de déterminer l'intensité de la lumière diffusée.

Chaque particule détectée par l'APS est classée dans l'un des 4 types d'évènements qui se distinguent par la structure du signal d'intensité de la lumière continue enregistré par le photodétecteur. Seules les particules qui engendrent exactement un signal de diffusion à deux pics, au-dessus d'un certain seuil d'intensité et dans le temps alloué à la particule pour traverser les deux faisceaux laser, sont considérées comme des mesures valides et incluent dans la distribution en taille. Les particules qui produisent qu'un seul pic ou plus de deux pics sont automatiquement rejetées par l'instrument. L'évènement qui ne produit qu'une seule crête est causé par une particule trop petite qui diffuse faiblement la lumière. Dans un tel cas, la mesure est interrompue et le temps de vol de la particule n'est pas enregistré. Néanmoins, l'évènement est enregistré pour le calcul des concentrations. L'évènement qui produit plus de deux crêtes au-dessus du seuil d'intensité permise du signal est le résultat d'une coïncidence, c'est-à-dire que deux particules ou plus traversent la chambre de détection simultanément. La mesure n'est pas incluse dans la distribution en taille, mais peut être utilisée pour la correction des concentrations de particules calculées. Si la seconde crête apparaît après le temps écoulé maximal qui est fixé à 4.096  $\mu$ s, le temps de vol de la particule correspondante n'est pas enregistré. Cet évènement est normalement associé soit à une grosse particule se déplaçant très

lentement, soit à une particule en recirculation qui traverse de nouveau les deux faisceaux laser.<sup>153-154, 157</sup>

### 1.5.3. *Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS)*

Le granulomètre de mobilité électrique à balayage (*Scanning Mobility Particle Sizer* ou SMPS) est un instrument d'analyse qui mesure en temps réel la distribution en taille des aérosols, fournissant ainsi aux scientifiques des informations sur la concentration en nombre, en volume ou en surface des particules d'aérosols à différents diamètres. Le SMPS est un des instruments les plus utilisés pour mesurer la distribution de la taille des particules submicroniques. Le granulomètre a été utilisé dans de nombreuses études en laboratoire et sur le terrain depuis plusieurs années. Ses applications comprennent la surveillance continue de l'environnement, le contrôle de la qualité de l'air intérieur et des essais cliniques. La flexibilité du SMPS, comme la possibilité de faire varier le débit ou de sélectionner le temps de balayage, est une caractéristique particulière qui le rend très attrayant pour de nombreux chercheurs. L'instrument est bien entendu conçu pour fonctionner rapidement, en continu et sans intervention humaine.<sup>161-162</sup> Un schéma de l'appareil est montré à la Figure 1-18. Le système SMPS est constitué de trois composantes principales : un chargeur bipolaire (traditionnellement appelé neutraliseur) qui donne une distribution de charges bien définie sur l'ensemble des particules, un analyseur différentiel de mobilité électrique (*Differential Mobility Analyzer* ou DMA) pour classifier les particules chargées selon leur taille et un compteur de particules à noyaux de condensation (*Condensation Particle Counter* ou CPC) pour mesurer la concentration en nombre des particules en fonction de leur taille.

Tout d'abord, les particules d'aérosols qui entrent dans le système subissent une redistribution des charges par le chargeur bipolaire afin de rapporter les niveaux de charge des particules à une distribution de charges à l'état d'équilibre. Autrement dit, toutes les particules échantillonnées sont individuellement chargées avec un nombre égal de particules chargées positivement et négativement. Les ions positifs et négatifs sont produits continuellement dans le chargeur dipolaire au moyen d'une source de rayons X ou d'une source radioactive. Les sources radioactives les plus communément utilisées dans ce modèle de granulomètre incluent  $^{85}\text{Kr}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{63}\text{Ni}$  et une combinaison de  $^{241}\text{Am}$  et  $^{210}\text{Po}$ .<sup>163</sup> Par la suite, les particules chargées

sont injectées dans le DMA qui prend la forme d'un large cylindre métallique avec une électrode interne chargée négativement placée en son centre et coaxialement alignée avec le cylindre. Un flux d'air laminaire et exempt de particules circule aussi à travers la colonne DMA à l'intérieur d'un espace situé entre la paroi du cylindre et l'électrode interne pour maintenir à l'écart le flux d'aérosol chargé de la paroi du cylindre. Les particules polydisperses sont donc entraînées par le flux d'air le long de la colonne et séparées en fonction de leur mobilité électrique.<sup>161, 164</sup>

Avec l'application d'une tension bien définie sur l'électrode interne, les particules d'aérosol sont attirées ou repoussées par l'électrode interne à différentes vitesses en fonction de la mobilité électrique de chaque particule. Les particules chargées négativement sont repoussées par l'électrode interne vers la paroi du cylindre. Les particules neutres ou non chargées sont tout simplement transportées par le flux d'air à l'extérieur de la colonne. Les particules chargées positivement se déplacent à travers le flux d'air en direction de l'électrode centrale à une vitesse déterminée par leur mobilité électrique. Les particules ayant une mobilité électrique élevée précipitent à proximité de l'entrée d'air, tandis que celles avec une mobilité électrique faible se déposent plus bas dans la colonne.<sup>165</sup> La mobilité électrique est proportionnelle au nombre de charges portées par la particule, mais inversement proportionnelle au diamètre de celle-ci. Ainsi, plus le diamètre de la particule est petit et plus le nombre de charges est élevé, plus la mobilité électrique de la particule est grande. Pour une tension donnée, seules les particules positivement chargées avec une mobilité électrique bien déterminée seront en mesure de passer à travers la colonne DMA et de sortir par une fente sur l'électrode interne située en aval de l'entrée d'air. Les autres particules sont éliminées de la colonne DMA par une sortie d'air.<sup>163-164</sup> Pour obtenir une distribution en taille complète d'un échantillon d'aérosols, la tension appliquée sur l'électrode interne est balayée de manière exponentielle.<sup>161</sup> La distribution en taille du SMPS est exprimée en termes de diamètre de mobilité électrique qui est le diamètre d'une sphère ayant la même vitesse de migration dans un champ électrique constant que la particule d'intérêt. Le diamètre de mobilité électrique est relativement identique au diamètre physique de la particule si et seulement si les particules d'aérosols échantillonnées possèdent une forme sphérique et ne contiennent aucun vide.<sup>159</sup>



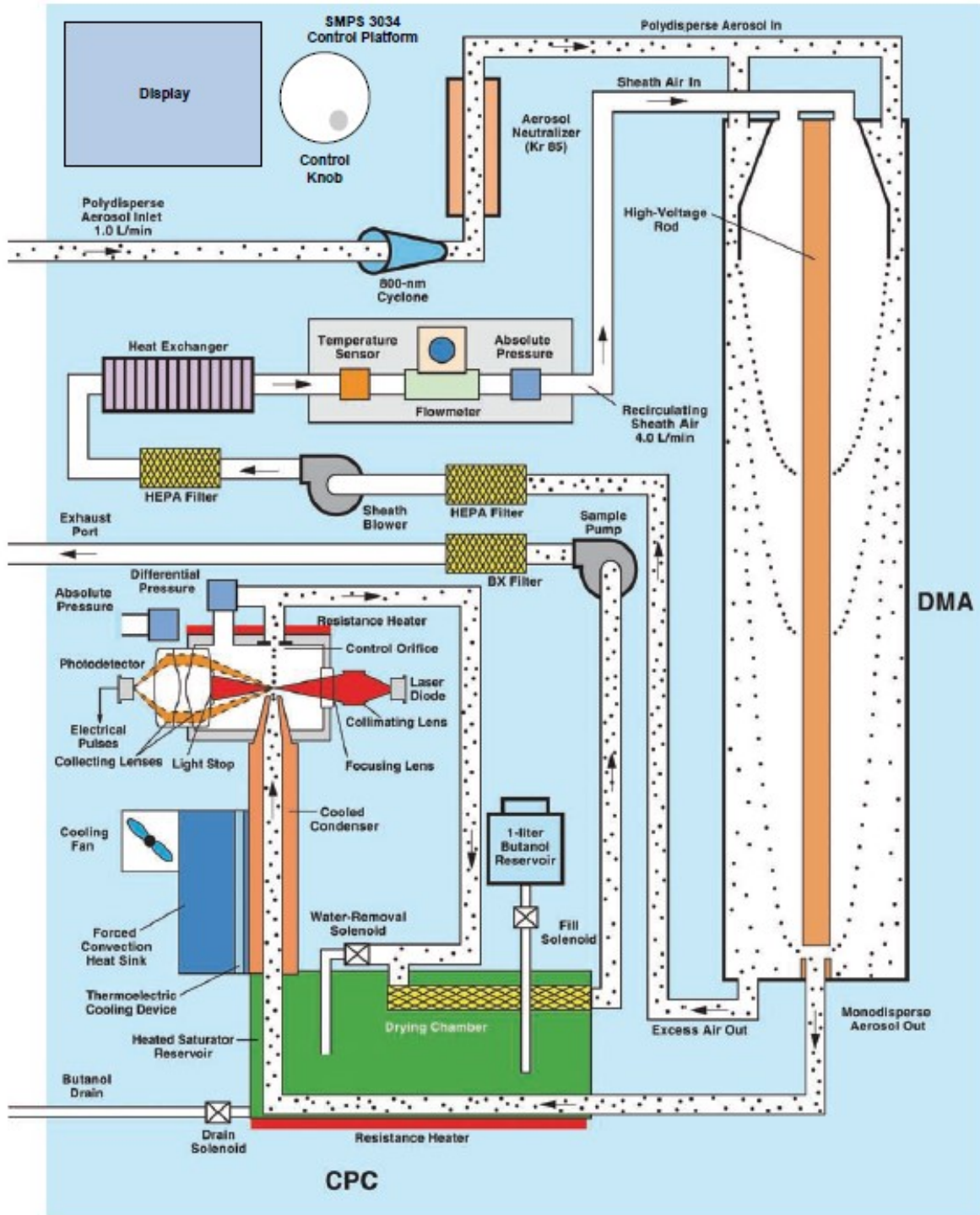


Figure 1-18 Diagramme d'un granulomètre de mobilité électrique à balayage (SMPS) et de ses composants.

(Schéma tiré de Intra et Tippayawong (2007)<sup>164</sup>)

Finalement, le flux d'air chargé d'aérosols monodisperses est transporté jusqu'au CPC où la concentration des particules pour une taille donnée est déterminée. Pour mesurer la distribution en taille des particules fines, un détecteur capable de quantifier la concentration des aérosols classifiés par taille doit être placé à la sortie du DMA.<sup>165</sup> Les compteurs optiques de particules conventionnels sont incapables de détecter des particules de taille inférieure à 50 nm. Pour compter les plus petites particules, il faut nécessairement faire appel au compteur de particules à noyaux de condensation qui est capable de détecter des tailles de particule supérieure ou égale à 2 nm selon le modèle. Dans ce type de compteur, les particules sont détectées et comptées en utilisant la diffusion de la lumière qui est une méthode de détection très semblable à celle de l'OPC. Cependant, dans un CPC, les particules subissent d'abord un grossissement par condensation pour atteindre une taille située autour de 10-12  $\mu\text{m}$  les rendant ainsi plus facilement détectables une fois arrivées au détecteur. Comme expliqué dans le prochain paragraphe, la plupart des CPC vendus sur le marché se servent de la méthode de refroidissement par conduction thermique ou diffusion thermique pour former des particules suffisamment grosses qui peuvent facilement être mesurées au détecteur.<sup>166</sup>

À leur sortie du DMA, les particules monodisperses traversent une chambre chauffée où elles sont exposées à de la vapeur d'eau ou de butanol saturée selon les modèles utilisés. Un flux d'air filtré peut aussi être injecté dans la chambre pour garantir une sursaturation maximale de toutes les particules. Dans ce cas-ci, le flux d'air est initialement séparé en deux parties dont l'un est filtré avant d'atteindre la chambre de saturation et l'autre est injecté au centre du flux filtré par le biais d'un capillaire. Les particules saturées en eau ou en butanol passent ensuite à l'intérieur d'un condensateur à froid où l'air refroidi devient sursaturé. Sous ces conditions, les particules au-dessus d'une certaine taille agissent comme des noyaux de condensation et se transforment en de grosses gouttelettes d'eau ou de butanol. Ce processus responsable de la formation des gouttelettes s'appelle la nucléation hétérogène. Le degré de sursaturation est normalement maintenu à des valeurs supérieures à 100 %, puisque la pression de vapeur sur une surface convexe est inférieure à celle sur une surface plane. Cet effet, connu sous le nom d'effet Kelvin, signifie que la vapeur d'eau ou de butanol requiert une énergie supplémentaire pour se condenser sur une surface bombée. La quantité de vapeur doit être toutefois suffisamment inférieure à la sursaturation critique du fluide de sorte à éviter la

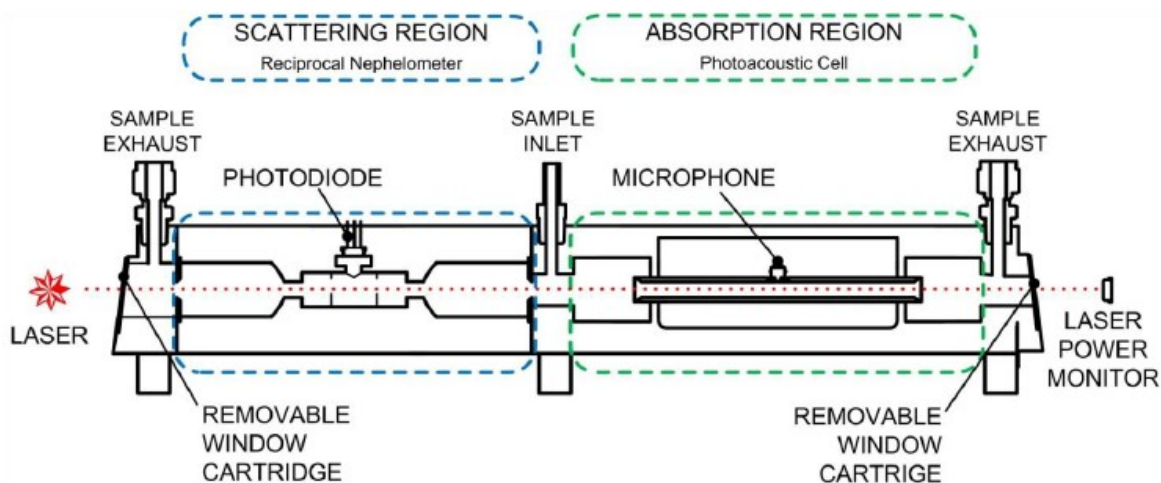
formation de gouttelettes par nucléation homogène et une surestimation de la concentration de particules. Les gouttelettes ainsi formées sont ensuite focalisées avant de traverser un faisceau laser où elles seront comptées. Le nombre de particules retrouvé dans un échantillon d'air est habituellement calculé en comptant le nombre d'impulsions de la lumière diffusée comme dans l'OPC. La taille de particule minimale pouvant être détectée dans un CPC est déterminée par le degré de sursaturation atteint qui à son tour dépend de la différence de température entre l'intérieur et l'extérieur du condensateur à froid.<sup>8, 166-167</sup>

### 1.5.4. *Photoacoustic Extinctionmeter (PAX)*

Inventé par les chercheurs Pat Arnott et Ian Arnold de l'Université du Nevada, l'extinctionmètre photoacoustique (*Photoacoustic Extinctionmeter* ou PAX) est un instrument de mesure de la qualité de l'air destiné à évaluer avec précision et en temps réel les propriétés optiques des aérosols qui ont un impact majeur sur les changements climatiques et la visibilité. Cet instrument photoacoustique se transporte facilement sur le terrain et peut être utilisé pour une large gamme d'applications comme dans les études de la pollution atmosphérique. Le PAX est également un appareil sensible, rapide et à haute résolution qui a grandement amélioré la précision des mesures du carbone noir et de sa surveillance.<sup>168</sup> Des paramètres tels que les coefficients de diffusion et d'absorption, l'albédo de diffusion simple, le coefficient d'extinction et la masse de carbone noir peuvent être directement obtenus à partir du PAX.

L'extinctionmètre photoacoustique mesure simultanément et directement la lumière diffusée et absorbée par les aérosols en se servant d'une diode laser modulée à une fréquence d'environ 1500 Hz. Les trois versions différentes de l'instrument, fonctionnant à des longueurs d'onde de 870, 405 et 532 nm respectivement, sont relativement identiques et ne diffèrent seulement que par quelques composantes optiques.<sup>169</sup> 870 nm est particulièrement sensible aux aérosols composés de carbone noir, car l'absorption par les gaz et les aérosols ne contenant pas de carbone noir est relativement faible à cette longue longueur d'onde. L'absorption à 405 nm est davantage associée aux composés organiques et au carbone brun, tandis que la diffusion à cette courte longueur d'onde est assez sensible aux particules fines. 532 nm est une longueur d'onde située dans le spectre visible, qui est la région du spectre électromagnétique que l'œil humain est capable de percevoir, et relève donc d'une importance pour l'étude de la

visibilité.<sup>170</sup> Les PAX, dont les mesures ont été rapportées dans le présent manuscrit, opèrent à des longueurs d'onde de 405 et 870 nm.



**Figure 1-19** Diagramme illustrant les cellules de diffusion (zone pointillée bleue) et d'absorption (zone pointillée verte) dans l'extinciomètre photoacoustique (PAX).

(Schéma tiré de Retama et al. (2015)<sup>169</sup>)

Un schéma de l'appareil est montré à la Figure 1-19. Les échantillons d'aérosols sont introduits dans l'instrument photoacoustique à un débit d'environ 1 L/min par l'intermédiaire d'une pompe à vide interne. Le flux d'air passe ensuite dans une enceinte acoustique où il se sépare en deux directions opposées après un virage de 90°. Le premier flux est dirigé vers une cellule de diffusion, appelée un néphélomètre réciproque à grand angle d'intégration, qui est utilisée pour déterminer le coefficient de diffusion de la lumière, alors que le second entre dans une cellule d'absorption ou photoacoustique qui sert à mesurer le coefficient d'absorption de la lumière. Après les mesures, le flux d'air est finalement évacué par deux orifices localisés aux extrémités des cellules de mesure avant d'être filtré et expulsé hors de l'instrument.<sup>169, 171-</sup>

<sup>172</sup> Le néphélomètre réciproque utilise le même principe de diffusion de la lumière par les particules que le néphélomètre traditionnel. Contrairement à ce dernier, le néphélomètre réciproque se distingue surtout par l'inversion de l'emplacement de la source de lumière et des détecteurs. De plus, la bande passante (*bandwidth*) de la source laser dans un néphélomètre réciproque est beaucoup plus étroite et mieux définie, ce qui facilite énormément la quantification de la lumière diffusée. Effectivement, dans un néphélomètre standard, une source de radiation incandescente à large bande et des filtres optiques sont utilisés pour

sélectionner la lumière diffusée dans une gamme de longueurs d'onde. Dans la cellule de diffusion, un faisceau laser généré par une diode laser de haute puissance est dispersé le long de son trajet par les particules en suspension et détecté en utilisant des photodiodes. La mesure de la diffusion par le PAX est sensible à tous les types de particules, et ce, indépendamment de la composition chimique, de l'état du mélange ou de la morphologie.<sup>170</sup>

La mesure de l'absorption de la lumière par les aérosols atmosphériques dans le PAX se base sur la technologie photoacoustique. Dans la cellule photoacoustique, également nommée un résonateur, la lumière incidente provenant de la diode laser est modulée à la fréquence de résonance de la cavité acoustique. Toutes particules en suspension ou tous gaz qui se trouvent dans le trajet du faisceau laser et absorbent à la longueur d'onde de la lumière incidente se réchauffent dans l'échantillon d'air. L'énergie du rayonnement absorbé par les particules d'aérosols se transfère ensuite rapidement à l'air ambiant sous forme de chaleur. Ce réchauffement périodique de l'air ambiant crée des ondes de pression, c'est-à-dire des ondes acoustiques ou sonores, qui sont captées par un petit microphone sensible placé au-dessus de la cellule d'absorption.<sup>171-173</sup> Pareillement, le facteur de qualité du résonateur et la fréquence de résonance, qui est calculé en fonction de la géométrie de la cellule photoacoustique, de la pression d'air, de la température et du point de rosé mesurés dans la cellule, sont déterminés pour convertir les perturbations photoacoustiques mesurées par le microphone en signal d'absorption de la lumière.<sup>169-170</sup> Une multitude de capteurs et transducteurs sont intégrés dans l'instrument photoacoustique. Les transducteurs de la cellule sont en mesure de quantifier la pression interne, l'humidité relative et la température.<sup>173</sup>

## 1.6. Propriétés optiques des aérosols

### 1.6.1. Extinction, diffusion et absorption de la lumière par les aérosols

Les propriétés optiques des aérosols atmosphériques sont à l'origine de nombreux phénomènes météorologiques spectaculaires, tels que les couchers de soleil colorés, les halos solaires et lunaires et les arcs-en-ciel. L'interaction du rayonnement électromagnétique avec les particules d'aérosol est aussi responsable de la formation du smog qui limite la visibilité dans l'atmosphère. D'ailleurs, une importante catégorie d'instruments se base sur ces propriétés optiques pour mesurer la taille et la concentration des aérosols dans l'air.<sup>1</sup> Lorsqu'un faisceau de lumière traverse un milieu contenant des aérosols, une partie de ce faisceau est dispersée et absorbée par les particules d'aérosols, ce qui diminue l'intensité du faisceau de lumière. Ce phénomène d'atténuation d'une onde électromagnétique par la diffusion et l'absorption est appelé extinction et est donné par l'équation de la loi de Beer-Lambert :

$$\frac{I}{I_0} = e^{B_{\text{ext}}L}$$

$$B_{\text{ext}} = B_{\text{sca}} + B_{\text{abs}}$$

Où  $\frac{I}{I_0}$  est le ratio entre l'intensité de la lumière traversant un échantillon d'aérosols et celle de la lumière incidente,  $B_{\text{ext}}$  est le coefficient d'extinction et  $L$  est la longueur du chemin optique. Le coefficient d'extinction est décrit comme la somme des coefficients de diffusion ( $B_{\text{sca}}$ ) et d'absorption ( $B_{\text{abs}}$ ). Le coefficient de diffusion est une mesure de l'efficacité des particules d'aérosols à disperser la lumière, alors que le coefficient d'absorption est une mesure de la quantité de lumière absorbée.<sup>1, 174</sup>  $B_{\text{sca}}$  et  $B_{\text{abs}}$  se calculent à partir de l'intégrale des facteurs de diffusion et d'absorption pour une population de particules de distribution en taille  $n(r)$  de la manière suivante :

$$B_{\text{sca}} = \int_0^{\infty} \pi r^2 Q_{\text{sca}}(r) n(r) dr$$

$$B_{\text{abs}} = \int_0^{\infty} \pi r^2 Q_{\text{abs}}(r) n(r) dr$$

Les coefficients de diffusion et d'absorption sont exprimés sous la forme d'un nombre qui est proportionnel à la quantité de lumière diffusée ou absorbée par unité de distance. En pratique, le mégamètre, noté Mm et égal à 1000 km, est souvent utilisé comme unité de distance. Cette unité décrit la quantité de lumière diffusée ou absorbée lorsqu'elle se déplace sur une distance d'un million de mètres.  $Q_{sca}$  et  $Q_{abs}$  représentent, respectivement, les facteurs de diffusion et d'absorption qui sont définis comme le rapport entre les sections efficaces de diffusion ou d'absorption ( $S_{sca}$  et  $S_{abs}$ ) et la section géométrique de la particule  $S_g$  :

$$Q_{sca} = \frac{S_{sca}}{S_g}$$

$$Q_{abs} = \frac{S_{abs}}{S_g}$$

$$Q_{ext} = Q_{sca} + Q_{abs}$$

Pour une particule sphérique de rayon  $r$ , la section géométrique est égale à  $\pi r^2$ .  $S_{sca}$  et  $S_{abs}$  correspondent à la surface de la particule d'aérosol qui interagit avec le rayonnement électromagnétique et quantifient le degré d'interaction de la particule avec ce rayonnement. De plus, le facteur d'extinction s'exprime de la même manière que le coefficient d'extinction.<sup>8</sup> Les facteurs de diffusion et d'absorption s'appliquent habituellement pour une seule particule, alors que les coefficients de diffusion et d'absorption sont plutôt utilisés lorsqu'on s'intéresse à un ensemble de particules.

L'extinction de la lumière par les aérosols est un phénomène assez commun dans la vie de tous les jours. Il suffit de penser à la lumière du soleil qui traverse une tempête de sable ou un nuage de pollution ou encore aux phares d'une automobile dans le brouillard. Quoique les processus de diffusion et d'absorption se produisent simultanément, il existe quelques cas où l'un des processus domine sur l'autre. Le rayonnement solaire dans le visible est presque entièrement atténué par diffusion en traversant un brouillard, tandis qu'il est surtout atténué par absorption en passant à travers les panaches de fumée provenant des mines de charbon. Pour mieux illustrer ce concept, imaginez trois récipients transparents (p. ex. trois boîtes à Petri) remplis d'eau. Quelques gouttes de lait sont ajoutées dans le premier récipient, quelques gouttes d'encre noire sont ajoutées dans le second récipient et le dernier récipient est gardé tel

quel comme montré à Figure 1-20. Le degré d'extinction de la lumière est quasi nul pour le récipient contenant uniquement de l'eau et c'est pour cette raison qu'il apparaît transparent. En revanche, le coefficient d'extinction est maximal pour les deux premières solutions qui apparaissent opaques. C'est pourquoi il est impossible de voir au travers du récipient. Pourtant, une différence majeure subsiste entre les deux solutions en les regardant directement à l'œil nu : le lait est blanc alors que l'encre est noire. D'un côté, le lait forme une suspension de particules faiblement absorbante qui, par conséquent, atténue la lumière principalement par diffusion ( $B_{\text{ext}} \approx B_{\text{sca}}$ ). De l'autre côté, l'encre noire est une suspension de molécules à base de carbone qui atténue la lumière principalement par absorption ( $B_{\text{ext}} \approx B_{\text{abs}}$ ) d'où l'absence de couleur. Ainsi, l'extinction est dominée par la diffusion dans le lait et par l'absorption dans l'encre noire.<sup>174</sup>



Figure 1-20 Illustration du phénomène d'extinction avec trois solutions aqueuses. La boîte à Petri à droite contient une suspension d'encre noire, celle à gauche contient une suspension de lait et, finalement, celle du haut ne contient que de l'eau.

(Image tirée des notes de cours de Patrick Hayes<sup>175</sup>)

### 1.6.2. Albédo de diffusion simple, exposants d'Ångström et indice de réfraction

Les propriétés optiques des aérosols et leur relation avec d'autres propriétés sont des éléments clés dans l'étude des effets radiatifs directs des aérosols atmosphériques sur le climat terrestre. Les propriétés optiques extensives sont dépendantes de la quantité d'aérosol dans le système, par exemple les coefficients de diffusion et d'absorption décrits plus haut. Les propriétés optiques intensives sont indépendantes de la quantité d'aérosol et comprennent, entre autres, l'albédo de diffusion simple, l'indice de réfraction complexe et les exposants



d'Ångström de diffusion, d'absorption et d'extinction. Les propriétés intensives des aérosols peuvent être obtenues à partir des mesures des propriétés extensives.<sup>135</sup> L'albédo de diffusion simple (*Single Scattering Albedo* ou SSA) indique l'efficacité de diffusion d'un aérosol ou d'une population d'aérosols. SSA est défini comme le rapport entre la diffusion et l'extinction (diffusion + absorption) selon l'équation suivante :

$$SSA = \frac{B_{sca}}{B_{sca} + B_{abs}} = \frac{B_{sca}}{B_{ext}} = 1 - \frac{B_{abs}}{B_{ext}}$$

La valeur de SSA est souvent utilisée comme indicateur pour déterminer l'importance de la diffusion par rapport à l'absorption, autrement dit la noirceur des aérosols, et donc pour caractériser le type d'aérosol mesuré. En effet, les aérosols peu absorbants (p. ex. le sel de mer) affichent des valeurs de SSA élevées et les aérosols fortement absorbants (p. ex. le carbone noir) ont des valeurs de SSA relativement faibles.<sup>51</sup>

L'exposant d'Ångström (*Ångström Exponent* ou AE), aussi appelé le coefficient ou le paramètre d'Ångström, a été initialement introduit en tant qu'une constante indépendante de la longueur d'onde dans une loi de puissance pour décrire la variation du coefficient d'extinction des aérosols ou de la profondeur optique en fonction de la longueur d'onde. Cette même constante est également nommée exposant d'Ångström d'extinction (*Extinction Ångström Exponent* ou EAE). Depuis lors, ce paramètre a trouvé de nouvelles applications dans la caractérisation de la « faible » dépendance en longueur d'onde des coefficients de diffusion et d'absorption, donnant respectivement les exposants d'Ångström de diffusion et d'absorption. En règle générale, les exposants d'Ångström expriment la dépendance de n'importe quel paramètre ( $p(\lambda)$ ) sur la longueur d'onde ( $\lambda$ ), à condition évidemment que  $p(\lambda)$  puisse être approximé en fonction de la longueur d'onde par une loi de puissance. L'exposant d'Ångström peut être donné par le rapport de  $p(\lambda)$  à deux longueurs d'onde  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$  en fonction du rapport de ces deux longueurs d'onde :

$$\frac{p(\lambda_1)}{p(\lambda_2)} = \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)^{-AE}$$

L'équation ci-dessus peut être réécrite d'une manière plus explicite de la façon suivante :

$$AE(\lambda_1, \lambda_2) = - \frac{\ln\left(\frac{p(\lambda_1)}{p(\lambda_2)}\right)}{\ln\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)} = - \frac{\ln(p(\lambda_1)) - \ln(p(\lambda_2))}{\ln(\lambda_1) - \ln(\lambda_2)}$$

Après réarrangement de l'équation, on déduit que  $AE(\lambda_1, \lambda_2)$  est donné par la pente négative de  $p(\lambda)$  entre les longueurs d'onde  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$  dans un graphique logarithmique.<sup>176-178</sup> Dans le cas présent, les exposants d'Ångström pour l'extinction, la diffusion et l'absorption se calculent de la manière suivante :

$$EAE(\lambda_1, \lambda_2) = - \frac{\ln(B_{\text{ext},\lambda_1}) - \ln(B_{\text{ext},\lambda_2})}{\ln(\lambda_1) - \ln(\lambda_2)}$$

$$SAE(\lambda_1, \lambda_2) = - \frac{\ln(B_{\text{sca},\lambda_1}) - \ln(B_{\text{sca},\lambda_2})}{\ln(\lambda_1) - \ln(\lambda_2)}$$

$$AAE(\lambda_1, \lambda_2) = - \frac{\ln(B_{\text{abs},\lambda_1}) - \ln(B_{\text{abs},\lambda_2})}{\ln(\lambda_1) - \ln(\lambda_2)}$$

L'exposant d'Ångström d'extinction représente la dépendance en longueur d'onde du coefficient d'extinction et est relié à la taille de l'aérosol. Ainsi, des valeurs d'EAE supérieures à 1 indiquent une prédominance de particules fines et des valeurs inférieures à 1 révèlent que les particules grossières sont prédominantes. Cependant, l'EAE est loin d'être un excellent indicateur de la taille moyenne exacte des particules d'aérosol, parce qu'il dépend aussi du coefficient d'absorption.<sup>179</sup> L'exposant d'Ångström de diffusion (*Scattering Ångström Exponent* ou SAE) décrit la dépendance en longueur d'onde du coefficient de diffusion de la lumière. Comme l'EAE, SAE est inversement proportionnel à la taille de l'aérosol, de sorte que les faibles valeurs de SAE signalent la présence de grosses particules d'aérosol, comme la poussière minérale ou le sel marin, et les valeurs de SAE plus élevées indiquent des particules d'aérosol relativement plus petites. Ce paramètre optique se situe généralement entre une valeur de 4 pour les plus petites particules et une valeur proche de 0, voire négative, pour les plus grosses particules. L'exposant d'Ångström d'absorption (*Absorption Ångström Exponent* ou AAE) représente la dépendance en longueur d'onde du coefficient d'absorption de l'aérosol. Cette propriété optique intensive de l'aérosol dépend de la composition des aérosols absorbants. Ainsi, chaque type d'aérosol possède une plage unique

de valeurs d'AAE. Par exemple, le carbone noir pur a une valeur théorique d'AAE d'environ 1, tandis que la poussière minérale est typiquement connue pour avoir des valeurs d'AAE supérieures à 2. Néanmoins, les valeurs d'AAE dépendent de la plage de longueurs d'onde considérée. Les valeurs peuvent également évoluer avec le temps par l'intermédiaire de différentes transformations physico-chimiques dans l'atmosphère et dépendent donc fortement de la composition, du revêtement et de la taille de l'aérosol.<sup>51, 135, 180</sup>

L'indice de réfraction des aérosols ambiants est une propriété optique très importante qui permet à la fois de calculer les paramètres relatifs au transfert radiatif et d'interpréter quantitativement les données mesurées à partir d'instruments optiques comme l'OPC.<sup>181-182</sup> Par définition, l'indice de réfraction d'un aérosol caractérise la manière dont celui-ci interagit avec le rayonnement électromagnétique et se présente sous la forme d'un nombre complexe sans dimension noté :

$$m = n - ik$$

La partie réelle  $n$  se décrit comme le rapport entre la vitesse de la lumière dans le milieu, c'est-à-dire l'aérosol, et celle dans le vide. Elle est associée au degré de diffusion de l'aérosol. La partie imaginaire de ce nombre  $k$  caractérise le degré d'absorption de l'aérosol. Le signe « - » qui est utilisé dans l'expression est tout simplement le résultat d'une convention.<sup>8, 147</sup> L'indice de réfraction des particules d'aérosol dépend de la longueur d'onde du rayonnement, du type de mélange et de la composition chimique. L'indice de réfraction des aérosols inorganiques en fonction de la teneur en eau est relativement bien connu. C'est le cas, par exemple, des sels de sulfate et de nitrate. Cela dit, l'indice de réfraction des aérosols organiques et du carbone noir est incertain et beaucoup plus variable, d'autant plus qu'il varie selon les sources d'émission. Les indices calculés et mesurés en laboratoire ne sont pas nécessairement représentatifs des aérosols observés dans l'atmosphère.<sup>8</sup> Le carbone noir donne une valeur typique de  $1.95 - 0.79i$  dans les longueurs d'onde du spectre visible.<sup>183</sup>

### 1.6.3. Théorie de Mie

L'interaction d'une onde électromagnétique avec une particule en suspension dans l'air induit plusieurs phénomènes optiques. L'absorption d'une fraction de ce rayonnement, la réflexion, la réfraction et la diffraction du faisceau lumineux en sont quelques exemples

communs. La réflexion se définit comme le changement de direction de la lumière à l'interface de deux milieux différents, la réfraction désigne la déviation de la lumière qui passe d'un milieu à un autre en raison d'un changement de vitesse de la lumière et, finalement, la diffraction décrit le phénomène d'interférence qui se produit lorsque la lumière passe à travers une fente. Tous ces effets optiques combinés entraînent une dispersion du rayonnement incident dans toutes les directions. Chaque particule devient donc une source de diffusion de la lumière dont l'intensité dépend de l'intensité du rayonnement incident, de la longueur d'onde, de la taille de l'aérosol, de sa morphologie, de l'indice de réfraction, de sa surface et de son uniformité.<sup>184</sup> La diffusion de la lumière peut être définie comme une redirection de la propagation d'une onde électromagnétique qui se produit lorsque celle-ci rencontre un obstacle, dans notre cas, une particule d'aérosol.

La diffusion est régie par le rapport entre la taille de la particule et la longueur d'onde du rayonnement. Ce rapport, qui est sans unité, est appelé le paramètre de taille  $x$  et s'écrit :

$$x = \frac{2\pi r}{\lambda}$$

où  $r$  est le rayon de la particule.<sup>185</sup> La diffusion de la lumière par les particules dont la taille est très petite par rapport à la longueur d'onde (inférieur à 0.05  $\mu\text{m}$  de diamètre) est décrite simplement par la théorie de diffusion de Rayleigh ou la théorie de la diffusion moléculaire. La diffusion par les particules dont la taille est très grande par rapport à la longueur d'onde (supérieur à 100  $\mu\text{m}$  de diamètre) peut être facilement analysée par l'optique géométrique qui se base sur la notion du rayon lumineux réfléchi, diffracté et réfracté à travers la particule. La théorie de diffusion de Mie, aussi appelée théorie de Lorenz-Mie, a été formulée pour la première fois par Gustav Mie en 1908 et vient combler le vide qui existait entre la théorie de Rayleigh et l'optique géométrique. La gamme de tailles couverte par la diffusion de Mie est d'un grand intérêt pour l'étude des aérosols aéroportés.<sup>8, 147</sup> Les paragraphes qui suivent ne sont consacrés qu'à la diffusion élastique de la lumière où la fréquence de la lumière diffusée est semblable à celle de la lumière incidente.

La diffusion de Rayleigh, nommé d'après le célèbre physicien britannique Lord Rayleigh, qui en fait la découverte à la fin du XIX<sup>e</sup> siècle, se réfère plus précisément à la diffusion élastique de la lumière par de petites particules diélectriques (non absorbantes) de

forme sphérique, souvent des molécules à l'état gazeux. Lorsqu'une onde électromagnétique interagit avec une particule, le nuage d'électrons à l'intérieur des molécules ou des atomes est périodiquement perturbé à la même fréquence que le champ électrique oscillant de l'onde incidente. La perturbation ou l'oscillation des orbites des électrons engendre une séparation des charges dans la molécule ou l'atome, c'est-à-dire une déformation du nuage électronique, pour ainsi créer un moment dipolaire induit. Le dipôle électrostatique oscillant à la même fréquence que le champ électromagnétique se manifeste en réémettant un rayonnement lumineux dans toutes les directions.<sup>186</sup> C'est ce rayonnement induit qui donne lieu à la diffusion de Rayleigh. La lumière diffusée par la particule est majoritairement émise à une fréquence identique à l'onde incidente.

L'intensité de la radiation diffusée  $I$  par une quelconque petite sphère de diamètre  $d$  et d'indice de réfraction  $n$  irradiée par une onde électromagnétique non polarisée de longueur d'onde  $\lambda$  et d'intensité  $I_0$  est donnée par :

$$I = I_0 \left( \frac{1 + \cos^2 \theta}{2R^2} \right) \left( \frac{2\pi}{\lambda} \right)^4 \left( \frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \right)^2 \left( \frac{d}{2} \right)^6$$

où  $R$  est la distance entre la particule ou le gaz et l'observateur et  $\theta$  est l'angle de diffusion de la lumière. L'équation ci-dessus démontre que l'intensité de la diffusion de Rayleigh à n'importe quel angle dépend fortement de la taille de la particule et de la longueur d'onde. La dépendance de la lumière diffusée sur la longueur d'onde ( $\lambda^{-4}$ ) signifie que les courtes longueurs d'onde (p. ex. le bleu) sont davantage diffusées contrairement aux longues longueurs d'onde (p. ex. le rouge). La lumière bleue est donc diffusée 16 fois plus fortement que la lumière rouge par les molécules d'air, à savoir  $N_2$  et  $O_2$ , ce qui explique pourquoi le ciel est bleu. De plus, il est possible de voir que l'intensité de la diffusion de Rayleigh est indépendante de la forme de la particule et demeure donc identique dans toutes les directions. Le terme  $(1 + \cos^2 \theta)$  est associé à la dépendance angulaire de la lumière diffusée.<sup>147</sup> La diffusion de Rayleigh s'applique qu'aux particules de taille beaucoup plus petite que la longueur d'onde de la lumière incidente ( $x \ll 1$ ), telles que les molécules, c'est-à-dire de dimensions inférieures au dixième (10%) de la longueur d'onde considérée. On parle de diffusion de Mie pour décrire les phénomènes observés dans le cas de particules de taille comparable ou supérieure à la longueur d'onde.<sup>185</sup>

La théorie de Mie, parfois aussi appelée théorie de Lorenz-Mie, fournit une solution générale et très exacte, mais complexe au problème de la diffusion élastique de la lumière par les particules. Les équations derrière cette théorie ne s'appliquent strictement qu'aux particules homogènes de forme sphérique, et ce, quels que soient la taille et l'indice de réfraction de la particule, et la longueur d'onde de la radiation incidente. En conséquence, la théorie est également valide pour les particules absorbantes et non absorbantes de dimension moléculaire aux particules assez grosses pour être traitées par l'optique classique. En d'autres termes, la théorie de Mie est semblable à la théorie de Rayleigh pour la gamme de taille couverte par ce dernier soit jusqu'à l'ordre de 1/10 de la longueur d'onde. La diffusion de Rayleigh est donc un cas limite de la diffusion de Mie. Lorsque les particules sont plus petites que la longueur d'onde, il est toutefois préférable de se servir de la théorie de Rayleigh à cause de sa simplicité. Bien qu'aucune limite de taille ne s'y applique, les équations deviennent très compliquées quand les particules ont des tailles très supérieures à la longueur d'onde de la lumière. La diffusion de Mie diffère cependant de la diffusion de Rayleigh à plusieurs égards : elle est plus grande dans le sens de la lumière incidente que dans le sens inverse et elle n'est pas toujours fortement dépendante de la longueur d'onde. La première signifie que plus la taille des particules est grande, plus la lumière est diffusée vers le sens de la lumière incidente. La seconde permet d'expliquer de nombreux phénomènes optiques météorologiques dont la couleur des nuages. Les gouttelettes d'eau qui forment les nuages ont une taille comparable aux longueurs d'onde du spectre visible (380 - 780 nm) et diffusent donc toutes les longueurs d'onde de manière presque identique, rendant ainsi les nuages blancs ou gris.<sup>147, 185</sup>

La diffusion de Mie est appliquée à la plupart des problèmes atmosphériques et est plus particulièrement utilisée pour calculer la quantité de lumière diffusée à différents angles, les sections optiques ou pour déterminer l'indice de réfraction d'un aérosol. La solution de Mie, qui se base sur l'optique ondulatoire, est une solution formelle et complète des équations de Maxwell sur la radiation électromagnétique en tenant compte des conditions limites à la surface de la particule. Schématiquement, la théorie de Mie développe les ondes électromagnétiques en harmoniques sphériques à l'intérieur et à l'extérieur de la particule et l'onde diffusée est déterminée en fonction des conditions de passage à la surface de la particule. On s'intéresse normalement à la solution loin de la particule, c'est-à-dire dans le

champ éloigné. Mathématiquement, elle prend la forme de plusieurs séries infinies de polynômes de Legendre et de fonctions de Bessel, ce qui a limité pendant longtemps son utilité en raison de l'énorme complexité des calculs. Jusqu'à l'arrivée des premiers ordinateurs, les calculs pour obtenir une simple solution pouvaient prendre de plusieurs heures à quelques mois.<sup>1, 8, 174</sup>

Les prochaines lignes visent à mettre en évidence les paramètres optiques qui dictent l'intensité de la lumière diffusée par une particule sphérique conformément à la théorie de Mie. Le lecteur est invité à consulter le manuel de Craig Bohren et Donald Huffman pour une description plus détaillée de la théorie de diffusion de Mie.<sup>185</sup> À une distance de la particule beaucoup plus grande que la longueur d'onde ( $R \gg \lambda$ ), dans la zone dite du champ éloigné, l'intensité de la lumière diffusée ( $I(\theta)$ ) dans une direction donnée  $\theta$  peut être résumée par l'équation simplifiée ci-dessous pour une radiation incidente monochromatique non polarisée ( $I_0$ ) et une particule sphérique :

$$I(\theta) = I_0 \frac{\lambda^2}{8\pi^2 R^2} (i_1(\theta) + i_2(\theta))$$

où  $i_1(\theta)$  et  $i_2(\theta)$  sont les fonctions d'intensité de Mie pour la lumière diffusée avec une polarisation perpendiculaire et parallèle, respectivement. Le sens physique des fonctions d'intensité est quelque peu complexe. Chaque fonction d'intensité peut être décomposée en une fonction d'amplitude et une fonction angulaire qui dépendent toutes les deux des moments multipolaires de la particule.<sup>147, 184</sup> Selon la théorie de Mie, la fonction d'amplitude de la diffusion,  $S(\theta)$ , se présente comme des séries infinies composées des fonctions de Bessel et de Legendre qui sont définies par les équations suivantes :

$$i_1(\theta) = |S_1(\theta)|^2$$

$$i_2(\theta) = |S_2(\theta)|^2$$

$$S_1(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} (a_n \pi_n + b_n \tau_n)$$

$$S_2(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} (b_n \pi_n + a_n \tau_n)$$

Les coefficients de Mie,  $a_n$  et  $b_n$ , sont tous les deux intrinsèquement liés à l'indice de réfraction complexe  $m$  et au paramètre de taille de la particule irradiée  $x$ , tandis que les fonctions dépendantes de l'angle,  $\pi_n$  et  $\tau_n$ , sont associées à l'angle de diffusion  $\theta$ .

$$a_n = \frac{m\psi_n(mx)\psi'_n(x) - \psi_n(x)\psi'_n(mx)}{m\psi_n(mx)\xi'_n(x) - \xi_n(x)\psi'_n(mx)}$$

$$b_n = \frac{\psi_n(mx)\psi'_n(x) - m\psi_n(x)\psi'_n(mx)}{\psi_n(mx)\xi'_n(x) - m\xi_n(x)\psi'_n(mx)}$$

$$\pi_n = \frac{P_n^1}{\sin\theta}$$

$$\tau_n = \frac{dP_n^1}{d\theta}$$

Le terme  $P_n^1$  fait appel au polynôme de Legendre de la première espèce d'ordre  $n$ .  $\psi_n(x)$  et  $\xi_n(x)$  sont les fonctions de Bessel-Ricatti qui sont définies en termes de la fonction de Bessel d'ordre demi-entier de la première espèce  $J_{n+1/2}(x)$  et de la fonction de Hânkél d'ordre demi-entier de la seconde espèce  $H_{n+1/2}$ ,  $\psi'_n(x)$  et  $\xi'_n(x)$  sont respectivement les dérivées premières des fonctions  $\psi_n(x)$  et  $\xi_n(x)$ .

$$\psi_n(x) = \sqrt{\frac{\pi x}{2}} J_{n+1/2}(x)$$

$$\xi_n(x) = \sqrt{\frac{\pi x}{2}} H_{n+1/2}(x)$$

Dès lors, la résolution du problème de Mie consiste à calculer numériquement les paramètres d'intensité de la diffusion de Mie,  $i_1(\theta)$  et  $i_2(\theta)$ , en fonction de l'angle de diffusion, de l'indice de réfraction et du paramètre de taille de la particule. Les coefficients  $a_n$ ,  $b_n$ ,  $\pi_n$  et  $\tau_n$  sont la clé pour déterminer les valeurs de  $i_1(\theta)$  et  $i_2(\theta)$  qui serviront à déduire l'intensité de diffusion totale de la particule. Les coefficients de Mie sont au cœur de la résolution du problème du calcul de l'intensité de la diffusion de la lumière, puisque les coefficients d'extinction, de diffusion et d'absorption sont dérivés des coefficients de Mie.<sup>174, 187-188</sup>



### 1.7. Objectifs

Comme on a mentionné au début de cet ouvrage, les aérosols atmosphériques jouent un rôle primordial dans la régulation du climat terrestre et sont en partie responsables de l'accélération du réchauffement climatique observé en Arctique au cours des dernières années. Toutefois, de grandes incertitudes entourent les effets radiatifs des aérosols sur le climat polaire principalement en raison du manque de mesures sur leur distribution spatiotemporelle et leur caractéristique physique, optique et chimique dans la région. Pour remédier à ce problème, une gamme d'instruments, qui ont été décrits en détail dans les sections précédentes, a été installée dans le laboratoire de recherche PEARL sur l'île d'Ellesmere dans le but de caractériser les aérosols dans le Haut-Arctique canadien. La distribution en taille des particules d'aérosols de 10 à 500 nm de diamètre a été mesurée à l'aide d'un SMPS, tandis que celle entre 0.05 et 10  $\mu\text{m}$  de diamètre a été mesurée avec un OPC et un APS. Les propriétés optiques des aérosols dont la diffusion et l'absorption de la lumière ont été quantifiées en utilisant deux PAX qui opèrent respectivement à des longueurs d'onde de 405 et 870 nm. La prise de mesures continues et en temps réel pour l'ensemble des instruments utilisés dans le cadre de ce projet s'est étalée sur 3 ans entre le 6 août 2016 et le 18 août 2019. Les données recueillies au cours de cette période permettront de répondre aux objectifs fixés qui sont les suivants :

- (1) Expliquer la variation temporelle de la distribution en taille et des propriétés optiques (SSA, SAE, AAE et l'indice de réfraction) des aérosols dans le Haut-Arctique canadien en tenant compte de la météorologie, des sources d'aérosol et de la chimie des aérosols;
- (2) Démontrer comment les propriétés optiques mesurées sont reliées à la distribution en taille des aérosols;
- (3) Interpréter les relations entre les propriétés optiques des aérosols qui nous informent sur la composition des aérosols et les processus atmosphériques qui les caractérisent;
- (4) Déterminer l'influence de la longueur d'onde sur la variabilité temporelle et systématique des aérosols;

- (5) Identifier les possibles sources régionales d'aérosol et leur contribution aux propriétés optiques durant les saisons hivernales et printanières.

## 1.8. Références (Chapitre 1)

1. Hinds, W. C., *Aerosol Technology - Properties, Behavior, and Measurement of Airborne Particles*. 2 ed.; Wiley: 1999.
2. Pruppacher, H. R.; Klett, J. D., *Microphysics of Clouds and Precipitation*. 2nd ed.; Kluwer Academic Publishers: Dordrecht, 1997.
3. Boucher, O., *Atmospheric Aerosols: Properties and Climate Impacts*. Springer Netherlands: 2015.
4. Voiland, A. *Aerosols: Tiny Particles, Big Impact*. <https://earthobservatory.nasa.gov/features/Aerosols/page1.php> (accessed 01 janvier 2019).
5. Fuzzi, S.; Andreae, M. O.; Huebert, B. J.; Kulmala, M.; Bond, T. C.; Boy, M.; Doherty, S. J.; Guenther, A.; Kanakidou, M.; Kawamura, K.; Kerminen, V. M.; Lohmann, U.; Russell, L. M.; Poschl, U., Critical assessment of the current state of scientific knowledge, terminology, and research needs concerning the role of organic aerosols in the atmosphere, climate, and global change. *Atmos. Chem. Phys.* **2006**, 6 (7), 2017-2038.
6. Poeschl, U., Atmospheric aerosols: Composition, transformation, climate and health effects. *Angew. Chem., Int. Ed.* **2005**, 44 (46), 7520-7540.
7. Tomasi, C.; Fuzzi, S.; Kokhanovsky, A., *Atmospheric Aerosols: Life Cycles and Effects on Air Quality and Climate*. 1st. ed.; Weinheim : Wiley-VCH: 2017.
8. Boucher, O., *Aérosols atmosphériques: Propriétés et impacts climatiques*. Springer: Paris, France, 2012.
9. Boucher, O.; Randall, D.; Artaxo, P.; Bretherton, C.; Feingold, G.; Forster, P.; Kerminen, V.-M.; Kondo, Y.; Liao, H.; Lohmann, U.; Rasch, P.; Satheesh, S. K.; Sherwood, S.; Stevens, B.; Zhang, X. Y., Clouds and Aerosols. In *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, Stocker, T. F.; Qin, D.; Plattner, G.-K.; Tignor, M.; Allen, S. K.; Boschung, J.; Nauels, A.; Xia, Y.; Bex, V.; Midgley, P. M., Eds. Cambridge University Press: Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 2013; pp 571–658.
10. IPCC, *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press: Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 2013; p 1535.

11. McNeill, V. F., Atmospheric Aerosols: Clouds, Chemistry, and Climate. *Annu. Rev. Chem. Biomol. Eng.* **2017**, *8*, 427-444.
12. Agranovski, I., *Aerosols: Science and Technology*. WILEY-VCH: 2010.
13. Monks, P. S.; Granier, C.; Fuzzi, S.; Stohl, A.; Williams, M. L.; Akimoto, H.; Amann, M.; Baklanov, A.; Baltensperger, U.; Bey, I.; Blake, N.; Blake, R. S.; Carslaw, K.; Cooper, O. R.; Dentener, F.; Fowler, D.; Fragkou, E.; Frost, G. J.; Generoso, S.; Ginoux, P.; Grewe, V.; Guenther, A.; Hansson, H. C.; Henne, S.; Hjorth, J.; Hofzumahaus, A.; Huntrieser, H.; Isaksen, I. S. A.; Jenkin, M. E.; Kaiser, J.; Kanakidou, M.; Klimont, Z.; Kulmala, M.; Laj, P.; Lawrence, M. G.; Lee, J. D.; Liousse, C.; Maione, M.; McFiggans, G.; Metzger, A.; Mieville, A.; Moussiopoulos, N.; Orlando, J. J.; O'Dowd, C. D.; Palmer, P. I.; Parrish, D. D.; Petzold, A.; Platt, U.; Pöschl, U.; Prévôt, A. S. H.; Reeves, C. E.; Reimann, S.; Rudich, Y.; Sellegri, K.; Steinbrecher, R.; Simpson, D.; ten Brink, H.; Theloke, J.; van der Werf, G. R.; Vautard, R.; Vestreng, V.; Vlachokostas, C.; von Glasow, R., Atmospheric composition change – global and regional air quality. *Atmos. Environ.* **2009**, *43* (33), 5268-5350.
14. Fuzzi, S.; Baltensperger, U.; Carslaw, K.; Decesari, S.; van der Gon, H. D.; Facchini, M. C.; Fowler, D.; Koren, I.; Langford, B.; Lohmann, U.; Nemitz, E.; Pandis, S.; Riipinen, I.; Rudich, Y.; Schaap, M.; Slowik, J. G.; Spracklen, D. V.; Vignati, E.; Wild, M.; Williams, M.; Gilardoni, S., Particulate matter, air quality and climate: lessons learned and future needs. *Atmos. Chem. Phys.* **2015**, *15* (14), 8217-8299.
15. Fowler, D.; Pilegaard, K.; Sutton, M. A.; Ambus, P.; Raivonen, M.; Duyzer, J.; Simpson, D.; Fagerli, H.; Fuzzi, S.; Schjoerring, J. K.; Granier, C.; Neftel, A.; Isaksen, I. S. A.; Laj, P.; Maione, M.; Monks, P. S.; Burkhardt, J.; Daemmgen, U.; Neiryneck, J.; Personne, E.; Wichink-Kruit, R.; Butterbach-Bahl, K.; Flechard, C.; Tuovinen, J. P.; Coyle, M.; Gerosa, G.; Loubet, B.; Altimir, N.; Gruenhage, L.; Ammann, C.; Cieslik, S.; Paoletti, E.; Mikkelsen, T. N.; Ro-Poulsen, H.; Cellier, P.; Cape, J. N.; Horvath, L.; Loreto, F.; Niinemets, U.; Palmer, P. I.; Rinne, J.; Misztal, P.; Nemitz, E.; Nilsson, D.; Pryor, S.; Gallagher, M. W.; Vesala, T.; Skiba, U.; Brüggemann, N.; Zechmeister-Boltenstern, S.; Williams, J.; O'Dowd, C.; Facchini, M. C.; de Leeuw, G.; Flossman, A.; Chaumerliac, N.; Erisman, J. W., Atmospheric composition change: Ecosystems-Atmosphere interactions. *Atmos. Environ.* **2009**, *43* (33), 5193-5267.
16. Buseck, P. R.; Adachi, K., Nanoparticles in the Atmosphere. *Elements* **2008**, *4* (6), 389-394.
17. Kumar, P.; Robins, A.; Vardoulakis, S.; Britter, R., A review of the characteristics of nanoparticles in the urban atmosphere and the prospects for developing regulatory controls. *Atmos. Environ.* **2010**, *44* (39), 5035-5052.

18. Johnston, M. V., Sampling and analysis of individual particles by aerosol mass spectrometry. *J. Mass Spectrom.* **2000**, 35 (5), 585-595.
19. Qualité de l'air ambiant et santé. [https://www.who.int/fr/news-room/fact-sheets/detail/ambient-\(outdoor\)-air-quality-and-health](https://www.who.int/fr/news-room/fact-sheets/detail/ambient-(outdoor)-air-quality-and-health) (accessed 13 janvier 2019).
20. Pope, C. A., III; Ezzati, M.; Dockery, D. W., Fine-particulate air pollution and life expectancy in the United States. *N. Engl. J. Med.* **2009**, 360 (4), 376-386.
21. Poussières en suspension. <https://www.citepa.org/fr/air-et-climat/polluants/poussieres-en-suspension> (accessed 13 janvier 2019).
22. Bakand, S.; Hayes, A.; Dechsakulthorn, F., Nanoparticles: a review of particle toxicology following inhalation exposure. *Inhal. Toxicol.* **2012**, 24 (2), 125-135.
23. Chow, J. C.; Watson, J. G.; Mauderly, J. L.; Costa, D. L.; Wyzga, R. E.; Vedal, S.; Hidy, G. M.; Altshuler, S. L.; Marrack, D.; Heuss, J. M.; Wolff, G. T.; Pope, C. A., III; Dockery, D. W., Health effects of fine particulate air pollution: lines that connect. *J. Air Waste Manage. Assoc.* **2006**, 56 (10), 1368-1380.
24. Oberdörster, G.; Oberdörster, E.; Oberdörster, J., Nanotoxicology: An Emerging Discipline Evolving from Studies of Ultrafine Particles. *Environ. Health Perspect.* **2005**, 113 (7), 823-839.
25. Bérubé, K.; Balharry, D.; Sexton, K.; Koshy, L.; Jones, T., COMBUSTION-DERIVED NANOPARTICLES: MECHANISMS OF PULMONARY TOXICITY. *Clin. Exp. Pharmacol. Physiol.* **2007**, 34 (10), 1044-1050.
26. De Kok, T. M. C. M.; Driee, H. A. L.; Hogervorst, J. G. F.; Briede, J. J., Toxicological assessment of ambient and traffic-related particulate matter: A review of recent studies. *Mutat. Res., Rev. Mutat. Res.* **2006**, 613 (2-3), 103-122.
27. Martinelli, N.; Olivieri, O.; Girelli, D., Air particulate matter and cardiovascular disease: A narrative review. *Eur. J. Intern. Med.* **2013**, 24 (4), 295-302.
28. Seemungal, T. A. R.; Wedzicha, J. A., Update in chronic obstructive pulmonary disease 2014. *Am. J. Respir. Crit. Care Med.* **2015**, 192 (9), 1036-1044.
29. Hoffmann, B.; Moebus, S.; Dragano, N.; Stang, A.; Moehlenkamp, S.; Schmermund, A.; Memmesheimer, M.; Broecker-Preuss, M.; Mann, K.; Erbel, R.; Joeckel, K.-H., Chronic residential exposure to particulate matter air pollution and systemic inflammatory markers. *Environ. Health Perspect.* **2009**, 117 (8), 1302-1308.

30. Wellenius, G. A.; Burger, M. R.; Coull, B. A.; Schwartz, J.; Suh, H. H.; Koutrakis, P.; Schlaug, G.; Gold, D. R.; Mittleman, M. A., Ambient air pollution and the risk of acute ischemic stroke. *Arch Intern Med* **2012**, *172* (3), 229-34.
31. Brook, R. D., Why physicians who treat hypertension should know more about air pollution. *J Clin Hypertens (Greenwich)* **2007**, *9* (8), 629-35.
32. Magalhaes, S.; Baumgartner, J.; Weichenthal, S., Impacts of exposure to black carbon, elemental carbon, and ultrafine particles from indoor and outdoor sources on blood pressure in adults: A review of epidemiological evidence. *Environ Res* **2017**, *161*, 345-353.
33. Rich, D. Q.; Schwartz, J.; Mittleman, M. A.; Link, M.; Luttmann-Gibson, H.; Catalano, P. J.; Speizer, F. E.; Dockery, D. W., Association of short-term ambient air pollution concentrations and ventricular arrhythmias. *Am J Epidemiol* **2005**, *161* (12), 1123-32.
34. Gehring, U.; Wijga, A. H.; Brauer, M.; Fischer, P.; de, J. J. C.; Kerkhof, M.; Oldenwening, M.; Smit, H. A.; Brunekreef, B., Traffic-related air pollution and the development of asthma and allergies during the first 8 years of life. *Am J Respir Crit Care Med* **2010**, *181* (6), 596-603.
35. Panella, P.; Casas, M.; Donaire-Gonzalez, D.; Garcia-Esteban, R.; Robinson, O.; Valentin, A.; Gulliver, J.; Momas, I.; Nieuwenhuijsen, M.; Vrijheid, M.; Sunyer, J., Ultrafine particles and black carbon personal exposures in asthmatic and non-asthmatic children at school age. *Indoor Air* **2017**, *27* (5), 891-899.
36. Weichenthal, S.; Villeneuve, P. J.; Burnett, R. T.; van Donkelaar, A.; Martin, R. V.; Jones, R. R.; DellaValle, C. T.; Sandler, D. P.; Ward, M. H.; Hoppin, J. A., Long-term exposure to fine particulate matter: association with nonaccidental and cardiovascular mortality in the agricultural health study cohort. *Environ. Health Perspect.* **2014**, *122* (6), 609-615, 7 pp.
37. Luben, T. J.; Nichols, J. L.; Dutton, S. J.; Kirrane, E.; Sacks, J. D.; Owens, E. O.; Datko-Williams, L.; Madden, M., A systematic review of cardiovascular emergency department visits, hospital admissions and mortality associated with ambient black carbon. *Environ Int* **2017**, *107*, 154-162.
38. Strickland, M. J.; Klein, M.; Correa, A.; Reller, M. D.; Mahle, W. T.; Riehle-Colarusso, T. J.; Botto, L. D.; Flanders, W. D.; Mulholland, J. A.; Siffel, C.; Marcus, M.; Tolbert, P. E., Ambient air pollution and cardiovascular malformations in Atlanta, Georgia, 1986-2003. *Am J Epidemiol* **2009**, *169* (8), 1004-14.
39. Yi, O.; Kim, H.; Ha, E., Does area level socioeconomic status modify the effects of PM10 on preterm delivery? *Environ. Res.* **2010**, *110* (1), 55-61.

40. Sapkota, A.; Chelikowsky, A. P.; Nachman, K. E.; Cohen, A. J.; Ritz, B., Exposure to particulate matter and adverse birth outcomes: a comprehensive review and meta-analysis. *Air Qual., Atmos. Health* **2012**, *5* (4), 369-381.
41. Dales, R. E.; Cakmak, S.; Vidal, C. B., Air pollution and hospitalization for headache in Chile. *Am J Epidemiol* **2009**, *170* (8), 1057-66.
42. Ranft, U.; Schikowski, T.; Sugiri, D.; Krutmann, J.; Kraemer, U., Long-term exposure to traffic-related particulate matter impairs cognitive function in the elderly. *Environ. Res.* **2009**, *109* (8), 1004-1011.
43. Zanobetti, A.; Dominici, F.; Wang, Y.; Schwartz, J. D., A national case-crossover analysis of the short-term effect of PM<sub>2.5</sub> on hospitalizations and mortality in subjects with diabetes and neurological disorders. *Environ. Health* **2014**, *13* (1), 38.
44. Ritz, B.; Lee, P.-C.; Hansen, J.; Lassen, C. F.; Ketznel, M.; Sorensen, M.; Raaschou-Nielsen, O., Traffic-Related Air Pollution and Parkinson's Disease in Denmark: A Case-Control Study. *Environ Health Perspect* **2016**, *124* (3), 351-6.
45. Jung, C.-R.; Lin, Y.-T.; Hwang, B.-F., Ozone, Particulate Matter, and Newly Diagnosed Alzheimer's Disease: A Population-Based Cohort Study in Taiwan. *J. Alzheimer's Dis.* **2015**, *44* (2), 573-584.
46. Colbeck, I.; Lazaridis, M., *Aerosol Science: Technology and Applications*. First ed.; John Wiley & Sons: 2014.
47. Nel, A., Air Pollution-Related Illness: Effects of Particles. *Science* **2005**, *308* (5723), 804-806.
48. Elsaesser, A.; Howard, C. V., Toxicology of nanoparticles. *Adv. Drug Delivery Rev.* **2012**, *64* (2), 129-137.
49. Haywood, J.; Boucher, O., Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: a review. *Rev. Geophys.* **2000**, *38* (4), 513-543.
50. Hansen, J.; Sato, M.; Ruedy, R., Radiative forcing and climate response. *J. Geophys. Res., [Atmos.]* **1997**, *102* (D6), 6831-6864.
51. Schmeisser, L.; Andrews, E.; Ogren, J. A.; Sheridan, P.; Jefferson, A.; Sharma, S.; Kim, J. E.; Sherman, J. P.; Sorribas, M.; Kalapov, I.; Arsov, T.; Angelov, C.; Mayol-Bracero, O. L.; Labuschagne, C.; Kim, S.-W.; Hoffer, A.; Lin, N.-H.; Chia, H.-P.; Bergin, M.; Sun, J.;

- Liu, P.; Wu, H., Classifying aerosol type using in situ surface spectral aerosol optical properties. *Atmos. Chem. Phys.* **2017**, *17* (19), 12097-12120.
52. Norris, J.; Slingo, A., Tendances observées sur les propriétés des nuages et le bilan radiatif de la Terre. *La Météorologie [ISSN 0026-1181]*, 2010, *Série 8, N° 69* ; p. 30-41 **2010**, 8 (69).
53. IPCC, *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press: Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 2007.
54. Isaksen, I. S. A.; Granier, C.; Myhre, G.; Berntsen, T. K.; Dalsøren, S. B.; Gauss, M.; Klimont, Z.; Benestad, R.; Bousquet, P.; Collins, W.; Cox, T.; Eyring, V.; Fowler, D.; Fuzzi, S.; Jöckel, P.; Laj, P.; Lohmann, U.; Maione, M.; Monks, P.; Prevo, A. S. H.; Raes, F.; Richter, A.; Rognerud, B.; Schulz, M.; Shindell, D.; Stevenson, D. S.; Storelvmo, T.; Wang, W. C.; van Weele, M.; Wild, M.; Wuebbles, D., Atmospheric composition change: Climate–Chemistry interactions. *Atmos. Environ.* **2009**, *43* (33), 5138-5192.
55. Twomey, S., The Influence of Pollution on the Shortwave Albedo of Clouds. *J. Atmos. Sci.* **1977**, *34* (7), 1149-1152.
56. Albrecht, B. A., Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness. *Science* **1989**, *245* (4923), 1227-30.
57. Lohmann, U.; Feichter, J., Global indirect aerosol effects: a review. *Atmos. Chem. Phys.* **2005**, *5* (3), 715-737.
58. Andreae, M. O.; Gelencser, A., Black carbon or brown carbon? The nature of light-absorbing carbonaceous aerosols. *Atmos. Chem. Phys.* **2006**, *6* (10), 3131-3148.
59. Long, C. M.; Nascarella, M. A.; Valberg, P. A., Carbon black vs. black carbon and other airborne materials containing elemental carbon: Physical and chemical distinctions. *Environ. Pollut. (Oxford, U. K.)* **2013**, *181*, 271-286.
60. Lack, D. A.; Moosmueller, H.; McMeeking, G. R.; Chakrabarty, R. K.; Baumgardner, D., Characterizing elemental, equivalent black, and refractory black carbon aerosol particles: a review of techniques, their limitations and uncertainties. *Anal. Bioanal. Chem.* **2014**, *406* (1), 99-122.
61. 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. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2013**, *118* (11), 5380-5552.
62. Novakov, T.; Rosen, H., The Black Carbon Story: Early History and New Perspectives. *Ambio* **2013**, *42* (7), 840-851.
63. Ramanathan, V.; Carmichael, G., Global and regional climate changes due to black carbon. *Nat. Geosci.* **2008**, *1* (4), 221-227.
64. Sasser, E.; Hemby, J.; Adler, K.; Anenberg, S.; Bailey, C.; Brockman, L.; Chappell, L.; DeAngelo, B.; Damberg, R.; Dawson, J.; Frank, N.; Geller, M.; Hagler, G.; Hemming, B.; Jantarasami, L.; Luben, T.; Mitchell, J.; Moss, J.; Rao, V.; Rice, J.; Sarofim, M.; Somers, J.; Spells, C.; Terry, S.; Witosky, M. *Report to Congress on Black Carbon*; United-States, March 2012, 2012; p 388.
65. Fierce, L.; Bond, T. C.; Bauer, S. E.; Mena, F.; Riemer, N., Black carbon absorption at the global scale is affected by particle-scale diversity in composition. *Nat. Commun.* **2016**, *7*, 12361.
66. G.J., K.; H.J., K., Increased surface albedo in the northern hemisphere. *Science* **1974**, *183*, 709-714.
67. Zhang, Y.; Kang, S.; Li, C.; Gao, T.; Cong, Z.; Sprenger, M.; Liu, Y.; Li, X.; Guo, J.; Sillanpaa, M.; Wang, K.; Chen, J.; Li, Y.; Sun, S., Characteristics of black carbon in snow from Laohugou No. 12 glacier on the northern Tibetan Plateau. *Sci. Total Environ.* **2017**, *607-608*, 1237-1249.
68. Li, X.; Kang, S.; He, X.; Qu, B.; Tripathee, L.; Jing, Z.; Paudyal, R.; Li, Y.; Zhang, Y.; Yan, F.; Li, G.; Li, C., Light-absorbing impurities accelerate glacier melt in the Central Tibetan Plateau. *Sci. Total Environ.* **2017**, *587-588*, 482-490.
69. Ming, J.; Xiao, C.; Du, Z.; Yang, X., An overview of black carbon deposition in High Asia glaciers and its impacts on radiation balance. *Adv. Water Resour.* **2013**, *55*, 80-87.
70. PINOT, J.-P.; KANDEL, R. ARCTIQUE OCÉAN.  
<http://www.universalis.fr/encyclopedie/ocean-arctique/> (accessed 10 février 2019).
71. Dérèglement climatique: la planète dévastée, et ce n'est que le début.  
<https://www.journaldemontreal.com/2019/11/27/dereglement-climatique-la-planete-devastee-et-ce-nest-que-le-debut> (accessed 27/11/2019).

72. Weber, B. Une vague de chaleur record dans l'Arctique. <https://www.lapresse.ca/actualites/environnement/201907/15/01-5234011-une-vague-de-chaleur-record-dans-larctique.php> (accessed 30/11/2019).
73. Cohen, J.; Screen, J. A.; Furtado, J. C.; Barlow, M.; Whittleston, D.; Coumou, D.; Francis, J.; Dethloff, K.; Entekhabi, D.; Overland, J.; Jones, J., Recent Arctic amplification and extreme mid-latitude weather. *Nat. Geosci.* **2014**, 7 (9), 627-637.
74. Overland, J. E.; Wang, M., When will the summer Arctic be nearly sea ice free? *Geophys. Res. Lett.* **2013**, 40 (10), 2097-2101.
75. Hinzman, L. D.; Deal, C. J.; Polyakov, I. V.; Walsh, J. E.; McGuire, A. D.; Mernild, S. H., Trajectory of the Arctic as an integrated system. *Ecol Appl* **2013**, 23 (8), 1837-68.
76. Brown, B. E.; Dunne, R. P.; Somerfield, P. J.; Edwards, A. J.; Simons, W. J. F.; Phongsuwan, N.; Putschim, L.; Anderson, L.; Naeije, M. C., Long-term impacts of rising sea temperature and sea level on shallow water coral communities over a ~40 year period. *Sci. Rep.* **2019**, 9 (1), 1-12.
77. Cereceda, R. 2019, annus horribilis pour l'Arctique, la ligne de front du changement et réchauffement climatique. <https://fr.euronews.com/2019/09/24/2019-annus-horribilis-pour-l-arctique-la-ligne-de-front-du-changement-et-rechauffement-cli> (accessed 30/11/2019).
78. Reuters Les glaces de l'Arctique pourraient disparaître l'été malgré l'accord de Paris. <https://ici.radio-canada.ca/nouvelle/1020702/arctique-sans-glaces-malgre-accord-2015> (accessed 10 février 2018).
79. Definitions of the Arctic region. <https://www.arcticcentre.org/EN/arcticregion/Maps/definitions> (accessed 27 avril 2020).
80. Serreze, M. C.; Holland, M. M.; Stroeve, J., Perspectives on the Arctic's Shrinking Sea-Ice Cover. *Science (Washington, DC, U. S.)* **2007**, 315 (5818), 1533-1536.
81. Brock, C. A.; Cozic, J.; Bahreini, R.; Froyd, K. D.; Middlebrook, A. M.; McComiskey, A.; Brioude, J.; Cooper, O. R.; Stohl, A.; Aikin, K. C.; de Gouw, J. A.; Fahey, D. W.; Ferrare, R. A.; Gao, R. S.; Gore, W.; Holloway, J. S.; Hubler, G.; Jefferson, A.; Lack, D. A.; Lance, S.; Moore, R. H.; Murphy, D. M.; Nenes, A.; Novelli, P. C.; Nowak, J. B.; Ogren, J. A.; Peischl, J.; Pierce, R. B.; Pilewskie, P.; Quinn, P. K.; Ryerson, T. B.; Schmidt, K. S.; Schwarz, J. P.; Sodemann, H.; Spackman, J. R.; Stark, H.; Thomson, D. S.; Thornberry, T.; Veres, P.; Watts, L. A.; Warneke, C.; Wollny, A. G., Characteristics, sources, and transport of aerosols measured in spring 2008 during the aerosol, radiation, and cloud processes affecting Arctic Climate (ARCPAC) project. *Atmos. Chem. Phys.* **2011**, 11 (6), 2423-2453.

82. Browse, J.; Carslaw, K. S.; Arnold, S. R.; Pringle, K.; Boucher, O., Scavenging processes controlling seasonal cycle in Arctic sulphate and black carbon aerosol. *Atmos. Chem. Phys.* **2012**, *12* (15), 6775-6798.
83. Aliabadi, A. A.; Staebler, R. M.; Sharma, S., Air quality monitoring in communities of the Canadian Arctic during the high shipping season with a focus on local and marine pollution. *Atmos. Chem. Phys.* **2015**, *15* (5), 2651-2673.
84. Peters, G. P.; Nilssen, T. B.; Lindholt, L.; Eide, M. S.; Glomsroed, S.; Eide, L. I.; Fuglestad, J. S., Future emissions from shipping and petroleum activities in the Arctic. *Atmos. Chem. Phys.* **2011**, *11* (11), 5305-5320.
85. Corbett, J. J.; Lack, D. A.; Winebrake, J. J.; Harder, S.; Silberman, J. A.; Gold, M., Arctic shipping emissions inventories and future scenarios. *Atmos. Chem. Phys.* **2010**, *10* (19), 9689-9704.
86. Gautier, D. L.; Bird, K. J.; Charpentier, R. R.; Grantz, A.; Houseknecht, D. W.; Klett, T. R.; Moore, T. E.; Pitman, J. K.; Schenk, C. J.; Schuenemeyer, J. H.; Sorensen, K.; Tennyson, M. E.; Valin, Z. C.; Wandrey, C. J., Assessment of Undiscovered Oil and Gas in the Arctic. *Science (Washington, DC, U. S.)* **2009**, *324* (5931), 1175-1179.
87. Euskirchen, E. S.; Bennett, A. P.; Breen, A. L.; Genet, H.; Lindgren, M. A.; Kurkowski, T. A.; McGuire, A. D.; Rupp, T. S., Consequences of changes in vegetation and snow cover for climate feedbacks in Alaska and northwest Canada. *Environ. Res. Lett.* **2016**, *11* (10), 105003/1-105003/19.
88. ARCTIC CLIMATE CHANGE. <https://arcticwwf.org/work/climate/> (accessed 17 février 2019).
89. Team, G., GISS Surface Temperature Analysis (GISTEMP). NASA Goddard Institute for Space Studies: 2019.
90. Serreze, M. C.; Barry, R. G., Processes and impacts of Arctic amplification: A research synthesis. *Global Planet. Change* **2011**, *77* (1), 85-96.
91. Quinn, P. K.; Bates, T. S.; Baum, E.; Doubleday, N.; Fiore, A. M.; Flanner, M.; Fridlind, A.; Garrett, T. J.; Koch, D.; Menon, S.; Shindell, D.; Stohl, A.; Warren, S. G., Short-lived pollutants in the Arctic: their climate impact and possible mitigation strategies. *Atmos. Chem. Phys.* **2008**, *8* (6), 1723-1735.
92. Law, K. S.; Stohl, A., Arctic Air Pollution: Origins and Impacts. *Science (Washington, DC, U. S.)* **2007**, *315* (5818), 1537-1540.

93. von Hardenberg, J.; Vozella, L.; Tomasi, C.; Vitale, V.; Lupi, A.; Mazzola, M.; van Noije, T. P. C.; Strunk, A.; Provenzale, A., Aerosol optical depth over the Arctic: a comparison of ECHAM-HAM and TM5 with ground-based, satellite and reanalysis data. *Atmos. Chem. Phys.* **2012**, *12* (15), 6953-6967.
94. Warren, S. G., Can black carbon in snow be detected by remote sensing? *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2013**, *118* (2), 779-786.
95. Sand, M.; Berntsen, T. K.; Kay, J. E.; Lamarque, J. F.; Seland, O.; Kirkevaag, A., The Arctic response to remote and local forcing of black carbon. *Atmos. Chem. Phys.* **2013**, *13* (1), 211-224, 14 pp.
96. Garrett, T. J.; Zhao, C., Increased Arctic cloud longwave emissivity associated with pollution from mid-latitudes. *Nature (London, U. K.)* **2006**, *440* (7085), 787-789.
97. Marelle, L.; Raut, J. C.; Thomas, J. L.; Law, K. S.; Quennehen, B.; Ancellet, G.; Pelon, J.; Schwarzenboeck, A.; Fast, J. D., Transport of anthropogenic and biomass burning aerosols from Europe to the Arctic during spring 2008. *Atmos. Chem. Phys.* **2015**, *15* (7), 3831-3850.
98. Ishii, S.; Shibata, T.; Sakai, T.; Kido, M.; Hara, K.; Osada, K.; Iwasaka, Y.; Nagai, T.; Fujimoto, T.; Itabe, T.; Mizutani, K.; Uchino, O., The source, size and chemical composition of the winter arctic tropospheric aerosol layer observed by lidar at Eureka, Canada. *J. Meteorol. Soc. Jpn.* **2001**, *79* (1), 61-78.
99. Shaw, G. E., The Arctic Haze Phenomenon. *B. Am. Meteorol. Soc.* **1995**, *76* (12), 2403-2414.
100. Hirdman, D.; Sodemann, H.; Eckhardt, S.; Burkhardt, J. F.; Jefferson, A.; Mefford, T.; Quinn, P. K.; Sharma, S.; Strom, J.; Stohl, A., Source identification of short-lived air pollutants in the Arctic using statistical analysis of measurement data and particle dispersion model output. *Atmos. Chem. Phys.* **2010**, *10* (2), 669-693.
101. Greenaway, K. R., *Experiences with Arctic flying weather*. Royal Meteorological Society Canadian Branch: Toronto, Ontario, Canada, 1950; Vol. 1.
102. Mitchell, J. M., Visual range in the polar regions with particular reference to the Alaskan Arctic. *J. Atmos. Terr. Phys.* **1957**, *17*, 195-211.
103. Shaw, G. E.; Wendler, G. In *Atmospheric turbidity measurements at McCall Glacier in northeast Alaska*, Conference Proc. On Atmospheric Radiation, Fort Collins, Colorado, Am. Met. Soc.: Fort Collins, Colorado, 1972; pp 181-187.

104. Barrie, L. A., Arctic air pollution: an overview of current knowledge. *Atmos. Environ.* **1986**, *20* (4), 643-63.
105. Rahn, K. A.; McCaffrey, R. J., On the origin and transport of the winter Arctic aerosol. *Ann. N. Y. Acad. Sci.* **1980**, *338* (Aerosols: Anthropogenic Nat., Sources Transp.), 486-503.
106. Rahn, K. A.; Borys, R. D.; Shaw, G. E., The Asian source of Arctic haze bands. *Nature (London)* **1977**, *268* (5622), 713-15.
107. Quinn, P. K.; Shaw, G.; Andrews, E.; Dutton, E. G.; Ruoho-Airola, T.; Gong, S. L., Arctic haze: current trends and knowledge gaps. *Tellus, Ser. B* **2007**, *59B* (1), 99-114.
108. Willis, M. D.; Leaitch, W. R.; Abbatt, J. P. D., Processes Controlling the Composition and Abundance of Arctic Aerosol. *Reviews of Geophysics* **2018**, *56* (4), 621-671.
109. Arnold, S. R.; Law, K. S.; Brock, C. A.; Thomas, J. L.; Starkweather, S. M.; von Salzen, K.; Stohl, A.; Sharma, S.; Lund, M. T.; Flanner, M. G.; Petaja, T.; Tanimoto, H.; Gamble, J.; Dibb, J. E.; Melamed, M.; Johnson, N.; Fidel, M.; Tynkkynen, V. P.; Baklanov, A.; Eckhardt, S.; Monks, S. A.; Browse, J.; Bozem, H., Arctic air pollution: Challenges and opportunities for the next decade. *Elementa-Sci. Anthropol.* **2016**, *4*, 1-17.
110. Cozic, J. Photos: NASA P3B Intercomparison. [https://esrl.noaa.gov/csd/projects/arcpac/photos/inter\\_p3b.php?num=3](https://esrl.noaa.gov/csd/projects/arcpac/photos/inter_p3b.php?num=3) (accessed 14 juillet 2017).
111. MacDonald, K. M.; Sharma, S.; Toom, D.; Chivulescu, A.; Platt, A.; Elsasser, M.; Huang, L.; Leaitch, R.; Chellman, N.; McConnell, J. R.; Bozem, H.; Kunkel, D.; Lei, Y. D.; Jeong, C.-H.; Abbatt, J. P. D.; Evans, G. J., Temporally delineated sources of major chemical species in high Arctic snow. *Atmos. Chem. Phys.* **2018**, *18* (5), 3485-3503.
112. Stohl, A., Characteristics of atmospheric transport into the Arctic troposphere. *J. Geophys. Res. Atm.* **2006**, *111* (D11).
113. Klonecki, A.; Hess, P.; Emmons, L.; Smith, L.; Orlando, J.; Blake, D., Seasonal changes in the transport of pollutants into the Arctic troposphere-model study. *J. Geophys. Res., [Atmos.]* **2003**, *108* (D4), TOP 15/1-TOP 15/21.
114. Fact sheet - Changing Atmosphere: Arctic Haze, Visible Air Pollution. Environment Canada, Atmospheric Environment Service: Ottawa, Ontario, Canada, 1989; Vol. En57-29/3-1989E, p 3.

115. Willis, M. D.; Köllner, F.; Burkart, J.; Bozem, H.; Thomas, J. L.; Schneider, J.; Aliabadi, A. A.; Hoor, P. M.; Schulz, H.; Herber, A. B.; Leaitch, W. R.; Abbatt, J. P. D., Evidence for marine biogenic influence on summertime Arctic aerosol. *Geophys. Res. Lett.* **2017**, *44* (12), 6460-6470.
116. 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. *Atmos. Chem. Phys.* **2016**, *16* (6), 3665-3682.
117. Freud, E.; Krejci, R.; Tunved, P.; Leaitch, R.; Nguyen, Q. T.; Massling, A.; Skov, H.; Barrie, L., Pan-Arctic aerosol number size distributions: seasonality and transport patterns. *Atmos. Chem. Phys.* **2017**, *17* (13), 8101-8128.
118. Leaitch, W. R.; Sharma, S.; Huang, L.; Toom-Sauntry, D.; Chivulescu, A.; Macdonald, A. M.; Salzen, K. v.; Pierce, J. R.; Bertram, A. K.; Schroder, J. C.; Shantz, N. C.; Chang, R. Y.-W.; Norman, A.-L., Dimethyl sulfide control of the clean summertime Arctic aerosol and cloud. *Elem. Sci. Anth.* **2013**, *1*.
119. 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. *Nat. Commun.* **2016**, *7*, 13444.
120. Evangeliou, N.; Balkanski, Y.; Hao, W. M.; Petkov, A.; Silverstein, R. P.; Corley, R.; Nordgren, B. L.; Urbanski, S. P.; Eckhardt, S.; Stohl, A.; Tunved, P.; Crepinsek, S.; Jefferson, A.; Sharma, S.; Noejgaard, J. K.; Skov, H., Wildfires in northern Eurasia affect the budget of black carbon in the Arctic - a 12-year retrospective synopsis (2002-2013). *Atmos. Chem. Phys.* **2016**, *16* (12), 7559-7567.
121. Mahmood, R.; von Salzen, K.; Flanner, M.; Sand, M.; Langner, J.; Wang, H.; Huang, L., Seasonality of global and Arctic black carbon processes in the Arctic Monitoring and Assessment Programme models. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2016**, *121* (12), 7100-7116.
122. Stohl, A.; Berg, T.; Burkhart, 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.; Toerseth, 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. *Atmos. Chem. Phys.* **2007**, *7* (2), 511-534.
123. Fromm, M.; Bevilacqua, R.; Servranckx, R.; Rosen, J.; Thayer, J. P.; Herman, J.; Larko, D., Pyro-cumulonimbus injection of smoke to the stratosphere: Observations and impact of a super blowup in northwestern Canada on 3-4 August 1998. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2005**, *110* (D8).

124. O'Neill, N. T.; Pancrati, O.; Baibakov, K.; Eloranta, E.; Batchelor, R. L.; Freemantle, J.; McArthur, L. J. B.; Strong, K.; Lindenmaier, R., Occurrence of weak, sub-micron, tropospheric aerosol events at high Arctic latitudes. *Geophys. Res. Lett.* **2008**, *35* (14), L14814/1-L14814/6.
125. Ranjbar, K.; O'Neill, N. T.; Lutsch, E.; McCullough, E. M.; AboEl-Fetouh, Y.; Xian, P.; Strong, K.; Fioletov, V. E.; Lesins, G.; Abboud, I., Extreme smoke event over the high Arctic. *Atmos. Environ.* **2019**, *218*, 117002.
126. Phillips, D. Arctic Haze. <https://www.thecanadianencyclopedia.ca/en/article/arctic-haze> (accessed 3 mars 2019).
127. Sharma, S.; Barrie, L. A.; Magnusson, E.; Brattstroem, G.; Leaitch, W. R.; Steffen, A.; Landsberger, S., A Factor and Trends Analysis of Multidecadal Lower Tropospheric Observations of Arctic Aerosol Composition, Black Carbon, Ozone, and Mercury at Alert, Canada. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2019**, *124* (24), 14133-14161.
128. Acosta Navarro, J. C.; Varma, V.; Riipinen, I.; Seland, O.; Kirkevaag, A.; Struthers, H.; Iversen, T.; Hansson, H. C.; Ekman, A. M. L., Amplification of Arctic warming by past air pollution reductions in Europe. *Nat. Geosci.* **2016**, *9* (4), 277-281.
129. Najafi, M. R.; Zwiers, F. W.; Gillett, N. P., Attribution of Arctic temperature change to greenhouse-gas and aerosol influences. *Nat. Clim. Change* **2015**, *5* (3), 246-249.
130. Di Pierro, M.; Jaeglé, L.; Eloranta, E. W.; Sharma, S., Spatial and seasonal distribution of Arctic aerosols observed by the CALIOP satellite instrument (2006–2012). *Atmos. Chem. Phys.* **2013**, *13* (14), 7075-7095.
131. Marelle, L.; Raut, J.-C.; Law, K. S.; Duclaux, O., Current and Future Arctic Aerosols and Ozone From Remote Emissions and Emerging Local Sources—Modeled Source Contributions and Radiative Effects. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2018**, *123* (22), 12,942-12,963.
132. Leaitch, W. R.; Kodros, J. K.; Willis, M. D.; Hanna, S.; Schulz, H.; Andrews, E.; Bozem, H.; Burkart, J.; Hoor, P.; Kolonjari, F.; Ogren, J. A.; Sharma, S.; Si, M.; von Salzen, K.; Bertram, A. K.; Herber, A.; Abbatt, J. P. D.; Pierce, J. R., Vertical profiles of light absorption and scattering associated with black-carbon particle fractions in the springtime Arctic above 79° N. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* **2019**, *2019*, 1-37.
133. Abbatt, J. P. D.; Leaitch, W. R.; Aliabadi, A. A.; Bertram, A. K.; Blanchet, J.-P.; Boivin-Rioux, A.; Bozem, H.; Burkart, J.; Chang, R. Y. W.; Charette, J.; Chaubey, J. P.; Christensen, R. J.; Cirisan, A.; Collins, D. B.; Croft, B.; Dionne, J.; Evans, G. J.; Fletcher, C. G.; Gali, M.; Ghahremaninezhad, R.; Girard, E.; Gong, W.; Gosselin, M.; Gourdal, M.; Hanna, S. J.; Hayashida, H.; Herber, A. B.; Hesarakhi, S.; Hoor, P.; Huang, L.; Hussherr, R.;

Irish, V. E.; Keita, S. A.; Kodros, J. K.; Kollner, F.; Kolonjari, F.; Kunkel, D.; Ladino, L. A.; Law, K.; Lévassieur, M.; Libois, Q.; Liggio, J.; Lizotte, M.; Macdonald, K. M.; Mahmood, R.; Martin, R. V.; Mason, R. H.; Miller, L. A.; Moravek, A.; Mortenson, E.; Mungall, E. L.; Murphy, J. G.; Namazi, M.; Norman, A.-L.; O'Neill, N. T.; Pierce, J. R.; Russell, L. M.; Schneider, J.; Schulz, H.; Sharma, S.; Si, M.; Staebler, R. M.; Steiner, N. S.; Thomas, J. L.; Salzen, K. v.; Wentzell, J. J. B.; Willis, M. D.; Wentworth, G. R.; Xu, J.-W.; Yakobi-Hancock, J. D., Overview paper: new insights into aerosol and climate in the Arctic. *Atmos. Chem. Phys.* **2019**, *19* (4), 2627-2560.

134. 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.

135. Schmeisser, L.; Backman, J.; Ogren, J. A.; Andrews, E.; Asmi, E.; Starkweather, S.; Uttal, T.; Fiebig, M.; Sharma, S.; Eleftheriadis, K.; Vratolis, S.; Bergin, M.; Tunved, P.; Jefferson, A., Seasonality of aerosol optical properties in the arctic. *Atmos. Chem. Phys.* **2018**, *18* (16), 11599-11622.

136. Stossel, D. I. High Arctic Weather Stations. <https://www.thecanadianencyclopedia.ca/en/article/high-arctic-weather-stations> (accessed 8 Juin 2019).

137. (MSC), M. S. o. C., *Welcome to the Eureka Weather Station*. Environment Canada - Environnement Canada: Canada, p 22.

138. Burke, J. Welcome to Eureka, Nunavut: the coldest settlement in Canada. <https://www.ctvnews.ca/sci-tech/welcome-to-eureka-nunavut-the-coldest-settlement-in-canada-1.3210321> (accessed 8 juin 2019).

139. Bogner, K.; Zhao, X.; Strong, K.; Chang, R. Y. W.; Frieß, U.; Hayes, P. L.; McClure-Begley, A.; Morris, S.; Tremblay, S.; Vicente-Luis, A., Measurements of bromine monoxide over four halogen 2 activation seasons in the Canadian High Arctic. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2020**, *In prep* (In prep).

140. Zhao, X.; Strong, K.; Adams, C.; Schofield, R.; Yang, X.; Richter, A.; Friess, U.; Blechschmidt, A.-M.; Koo, J.-H., A case study of a transported bromine explosion event in the Canadian high arctic. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2016**, *121* (1), 457-477.

141. Andrews, E.; Ogren, J. A.; Bonasoni, P.; Marinoni, A.; Cuevas, E.; Rodríguez, S.; Sun, J. Y.; Jaffe, D. A.; Fischer, E. V.; Baltensperger, U.; Weingartner, E.; Coen, M. C.; Sharma, S.; Macdonald, A. M.; Leitch, W. R.; Lin, N. H.; Laj, P.; Arsov, T.; Kalapov, I.; Jefferson, A.; Sheridan, P., Climatology of aerosol radiative properties in the free troposphere. *Atmos. Res.* **2011**, *102* (4), 365-393.



142. Delene, D. J.; Ogren, J. A., Variability of Aerosol Optical Properties at Four North American Surface Monitoring Sites. *J. Atmos. Sci.* **2002**, *59* (6), 1135-1150.
143. Tremblay, S.; Picard, J.-C.; Bachelder, J. O.; Lutsch, E.; Strong, K.; Fogal, P.; Leitch, W. R.; Sharma, S.; Kolonjari, F.; Cox, C. J.; Chang, R. Y. W.; Hayes, P. L., Characterization of aerosol growth events over Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016. *Atmos. Chem. Phys.* **2019**, *19* (8), 5589-5604.
144. Colbeck, I., *Environmental Chemistry of Aerosols*. Blackwell Publishing Ltd.: 2008.
145. Laskin, J.; Laskin, A.; Nizkorodov, S. A., Mass Spectrometry Analysis in Atmospheric Chemistry. *Anal. Chem.* **2017**.
146. Laskin, A.; Laskin, J.; Nizkorodov, S. A., Mass spectrometric approaches for chemical characterisation of atmospheric aerosols: critical review of the most recent advances. *Environ. Chem.* **2012**, *9* (3), 163-189.
147. Hinds, W. C., *Aerosol Technology - Properties, Behavior, and Measurement of Airborne Particles*, 2nd ed. 1999; Vol. null, p 51.
148. Santi, E.; Belosi, F.; Santachiara, G.; Prodi, F.; Berico, M., Real-time aerosol photometer and optical particle counter comparison. *Nuovo Ciment. B.* **2010**, *125* (8), 969-981.
149. Welker, R. W., Chapter 4 - Size Analysis and Identification of Particles. In *Developments in Surface Contamination and Cleaning*, Kohli, R.; Mittal, K. L., Eds. William Andrew Publishing: Oxford, 2012; pp 179-213.
150. Sousan, S.; Koehler, K.; Hallett, L.; Peters, T. M., Evaluation of the Alphasense Optical Particle Counter (OPC-N2) and the Grimm Portable Aerosol Spectrometer (PAS-1.108). *Aerosol Sci. Technol.* **2016**, *50* (12), 1352-1365.
151. Chien, C.-H.; Theodore, A.; Wu, C.-Y.; Hsu, Y.-M.; Birky, B., Upon correlating diameters measured by optical particle counters and aerodynamic particle sizers. *J. Aerosol Sci.* **2016**, *101*, 77-85.
152. Burkart, J.; Steiner, G.; Reischl, G.; Moshhammer, H.; Neuberger, M.; Hitzenberger, R., Characterizing the performance of two optical particle counters (Grimm OPC1.108 and OPC1.109) under urban aerosol conditions. *J. Aerosol Sci.* **2010**, *41* (10), 953-962.
153. Aerodynamic Particle Sizer Model 3321 - theory of operation. In *TSI Incorporated*, TSI Incorporated: États-Unis, 2012.

154. Pagels, J.; Gudmundsson, A.; Gustavsson, E.; Asking, L.; Bohgard, M., Evaluation of Aerodynamic Particle Sizer and Electrical Low-Pressure Impactor for Unimodal and Bimodal Mass-Weighted Size Distributions. *Aerosol Sci. Technol.* **2005**, *39* (9), 871-887.
155. PETERS, T. M.; OTT, D.; O'SHAUGHNESSY, P. T., Comparison of the Grimm 1.108 and 1.109 Portable Aerosol Spectrometer to the TSI 3321 Aerodynamic Particle Sizer for Dry Particles. *Ann. Occup. Hyg.* **2006**, *50* (8), 843-850.
156. AERODYNAMIC PARTICLE SIZER MODEL 3321 - HIGH-RESOLUTION AERODYNAMIC SIZING PLUS LIGHT-SCATTERING INTENSITY. In *TSI Incorporated*, TSI Incorporated: 2017.
157. Kesavan, J. S.; Bottiger, J. R.; Schepers, D. R.; McFarland, A. R., Comparison of Particle Number Counts Measured with an Ink Jet Aerosol Generator and an Aerodynamic Particle Sizer. *Aerosol Sci. Technol.* **2014**, *48* (2), 219-227.
158. Science, C. f. A. Aerodynamic Particle Sizer. <http://www.cas.manchester.ac.uk/restools/instruments/aerosol/aps/> (accessed 13 juillet 2019).
159. DeCarlo, P. F.; Slowik, J. G.; Worsnop, D. R.; Davidovits, P.; Jimenez, J. L., Particle Morphology and Density Characterization by Combined Mobility and Aerodynamic Diameter Measurements. Part 1: Theory. *Aerosol Sci. Tech.* **2004**, *38* (12), 1185-1205.
160. Pfeifer, S.; Mueller, T.; Weinhold, K.; Zikova, N.; Martins dos Santos, S.; Marinoni, A.; Bischof, O. F.; Kykal, C.; Ries, L.; Meinhardt, F.; Aalto, P.; Mihalopoulos, N.; Wiedensohler, A., Intercomparison of 15 aerodynamic particle size spectrometers (APS 3321): uncertainties in particle sizing and number size distribution. *Atmos. Meas. Tech.* **2016**, *9* (4), 1545-1551.
161. Hogrefe, O.; Lala, G. G.; Frank, B. P.; Schwab, J. J.; Demerjian, K. L., Field Evaluation of a TSI Model 3034 Scanning Mobility Particle Sizer in New York City: Winter 2004 Intensive Campaign. *Aerosol Sci. Tech.* **2006**, *40* (10), 753-762.
162. SCANNING MOBILITY PARTICLE SIZER SPECTROMETER 3034. <https://www.tsi.com/discontinued-products/scanning-mobility-particle-sizer-spectrometer-3034/> (accessed 22 juin 2019).
163. Wiedensohler, A.; Birmili, W.; Nowak, A.; Sonntag, A.; Weinhold, K.; Merkel, M.; Wehner, B.; Tuch, T.; Pfeifer, S.; Fiebig, M.; Fjåraa, A. M.; Asmi, E.; Sellegri, K.; Depuy, R.; Venzac, H.; Villani, P.; Laj, P.; Aalto, P.; Ogren, J. A.; Swietlicki, E.; Williams, P.; Roldin, P.; Quincey, P.; Hüglin, C.; Fierz-Schmidhauser, R.; Gysel, M.; Weingartner, E.; Riccobono, F.; Santos, S.; Grüning, C.; Faloon, K.; Beddows, D.; Harrison, R.; Monahan, C.; Jennings, S. G.; O'Dowd, C. D.; Marinoni, A.; Horn, H. G.; Keck, L.; Jiang, J.; Scheckman, J.; McMurry, P.

H.; Deng, Z.; Zhao, C. S.; Moerman, M.; Henzing, B.; de Leeuw, G.; Löschau, G.; Bastian, S., Mobility particle size spectrometers: harmonization of technical standards and data structure to facilitate high quality long-term observations of atmospheric particle number size distributions. *Atmos. Meas. Tech.* **2012**, *5* (3), 657-685.

164. Intra, P.; Tippayawong, N., An overview of aerosol particle sensors for size distribution measurement. *Maejo Int. J. Sci. Technol.* **2007**, *1* (2), 120-136.

165. Lee, B. P.; Li, Y. J.; Flagan, R. C.; Lo, C.; Chan, C. K., Sizing Characterization of the Fast-Mobility Particle Sizer (FMPS) Against SMPS and HR-ToF-AMS. *Aerosol Sci. Tech.* **2013**, *47* (9), 1030-1037.

166. Science, C. f. A. Condensation Particle Counters (CPC).  
<http://www.cas.manchester.ac.uk/restools/instruments/aerosol/cpc/> (accessed 22 juin 2019).

167. Kulkarni, P.; Baron, P. A.; Willeke, K., *Aerosol Measurement: Principles, Techniques, and Applications*. 3 ed.; Wiley: 2011; p 900.

168. University of Nevada, R. Next-generation device developed to track world's air quality.  
<https://www.sciencedaily.com/releases/2011/03/110329151452.htm> (accessed 24 juin 2019).

169. Retama, A.; Baumgardner, D.; Raga, G. B.; McMeeking, G. R.; Walker, J. W., Seasonal and diurnal trends in black carbon properties and co-pollutants in Mexico City. *Atmos. Chem. Phys.* **2015**, *15* (16), 9693-9709.

170. Technologies, D. M. The Photoacoustic Extinctionmeter (PAX).  
<http://www.dropletmeasurement.com/products/black-carbon/PAX> (accessed 24 juin 2019).

171. Krasowsky, T. S.; McMeeking, G. R.; Wang, D.; Sioutas, C.; Ban-Weiss, G. A., Measurements of the impact of atmospheric aging on physical and optical properties of ambient black carbon particles in Los Angeles. *Atmos. Environ.* **2016**, *142* (Supplement C), 496-504.

172. Stockwell, C. E.; Jayarathne, T.; Cochrane, M. A.; Ryan, K. C.; Putra, E. I.; Saharjo, B. H.; Nurhayati, A. D.; Albar, I.; Blake, D. R.; Simpson, I. J.; Stone, E. A.; Yokelson, R. J., Field measurements of trace gases and aerosols emitted by peat fires in Central Kalimantan, Indonesia, during the 2015 El Niño. *Atmos. Chem. Phys.* **2016**, *16* (18), 11711-11732.

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

174. Bohren, C. F.; Huffman, D. R., *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. Wiley: 2004.
175. Hayes, P., L'extinction de rayonnement. In *CHM3104 - Chimie analytique environnementale*, Université de Montréal: p 18.
176. Moosmuller, H.; Chakrabarty, R. K., Technical note: simple analytical relationships between Angstrom coefficients of aerosol extinction, scattering, absorption, and single scattering albedo. *Atmos. Chem. Phys.* **2011**, *11* (20), 10677-10680.
177. Moosmuller, H.; Chakrabarty, R. K.; Ehlers, K. M.; Arnott, W. P., Absorption Angstrom coefficient, brown carbon, and aerosols: basic concepts, bulk matter, and spherical particles. *Atmos. Chem. Phys.* **2011**, *11* (3), 1217-1225.
178. 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. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2012**, *117* (June), D11210/1-D11210/10.
179. Valenzuela, A.; Olmo, F. J.; Lyamani, H.; Anton, M.; Titos, G.; Cazorla, A.; Alados-Arboledas, L., Aerosol scattering and absorption Angström exponents as indicators of dust and dust-free days over Granada (Spain). *Atmos. Res.* **2015**, *154*, 1-13.
180. Liu, C.; Chung, C. E.; Yin, Y.; Schnaiter, M., The absorption Ångström exponent of black carbon: from numerical aspects. *Atmos. Chem. Phys.* **2018**, *18* (9), 6259-6273.
181. Radney, J. G.; Zangmeister, C. D., Comparing aerosol refractive indices retrieved from full distribution and size- and mass-selected measurements. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **2018**, *220*, 52-66.
182. Zhang, Y.; Li, Z.; Zhang, Y.; Li, D.; Qie, L.; Che, H.; Xu, H., Estimation of aerosol complex refractive indices for both fine and coarse modes simultaneously based on AERONET remote sensing products. *Atmos. Meas. Tech.* **2017**, *10* (9), 3203-3213.
183. Bergstrom, R. W.; Pilewskie, P.; Russell, P. B.; Redemann, J.; Bond, T. C.; Quinn, P. K.; Sierau, B., Spectral absorption properties of atmospheric aerosols. *Atmos. Chem. Phys.* **2007**, *7* (23), 5937-5943.
184. Görner, P.; Simon, X.; Bémer, D.; Lidén, G., Workplace aerosol mass concentration measurement using optical particle counters. *J. Environ. Monit.* **2012**, *14* (2), 420-428.
185. Bohren, C. F.; Huffman, D. R., *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. John Wiley & Sons Inc.: New York, USA, 1998.

186. Young, A. T., Rayleigh scattering. *Appl. Opt.* **1981**, 20 (4), 533-535.
187. Ye, Z.; Jiang, X.; Wang, Z., Measurements of Particle Size Distribution Based on Mie Scattering Theory and Markov Chain Inversion Algorithm. *J. Softw.* **2012**, 7 (10), 2309-2316.
188. Liou, K.-N., A complementary theory of light scattering by homogeneous spheres. *Appl. Math. Comput.* **1977**, 3 (4), 331-358.

**Chapitre 2 - *In situ* optical  
and microphysical  
properties of tropospheric  
aerosols in the Canadian  
High Arctic from 2016 to  
2019**

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

### 2.1. Préface

Les principaux résultats de la recherche effectuée dans le cadre de ce mémoire sont présentés sous la forme d'un article soumis pour publication à la revue scientifique « Atmospheric Environment ». Le chapitre qui suit présente le texte intégral de l'article qui porte sur la caractérisation des propriétés optiques et microphysiques des aérosols troposphériques sur l'île d'Ellesmere dans l'archipel arctique canadien pour la période 2016-2019. Le texte de l'article a été quelque peu modifié ou adapté pour pouvoir s'intégrer à la mise en page du mémoire. Je suis le principal chercheur et premier auteur de cet article qui a été rédigé sous la supervision de mon directeur de recherche Patrick Hayes. En plus de créer les figures et les tableaux, j'ai écrit au complet le texte de l'article et apporté les corrections nécessaires en réponse aux commentaires des co-auteurs de l'article. J'ai également participé au traitement et à l'analyse des données provenant de multiples instruments dont j'ai assuré leur installation, leur entretien et leur calibration. Cet article n'aurait pas pu être écrit sans la collaboration généreuse de nombreux chercheurs et collègues. L'ancienne étudiante qui a commencé ce projet, Samantha Tremblay, a pris part aux travaux sur le terrain, au traitement des données antérieures et à l'entretien de l'équipement scientifique. Pierre Fogal est le gestionnaire du laboratoire PEARL dans le Haut-Arctique canadien. Il a aussi participé aux travaux sur le terrain en assurant le transport, le logement et le transfert des données. Les trajectoires inverses des particules d'aérosols ont été calculées à l'aide du modèle lagrangien de dispersion de particules FLEXPART par l'étudiante au doctorat Joelle Dionne et de sa superviseure Rachel Y.-W. Chang de l'Université Dalhousie. Cette dernière nous a aussi fourni deux instruments permettant de mesurer la distribution en taille des particules supérieures à 500 nm. En plus d'offrir de précieux conseils, les chercheurs W. Richard Leitch, Sangeeta Sharma et Felicia Kolonjari d'Environnement et Changements Climatiques Canada nous ont donné la permission d'utiliser un de leur instrument installé sur place dont les données recueillies ont été très utiles pour la rédaction de cet article.

## ***In situ* optical and microphysical properties of tropospheric aerosols in the Canadian High Arctic from 2016 to 2019**

Andy Vicente-Luis<sup>1</sup>, Samantha Tremblay<sup>1</sup>, Joelle Dionne<sup>2</sup>, Rachel Y.-W. Chang<sup>2</sup>, Pierre F. Fogal<sup>3</sup>, W. Richard Leitch<sup>4</sup>, Sangeeta Sharma<sup>4</sup>, Felicia Kolonjari<sup>5</sup>, and Patrick L. Hayes<sup>1\*</sup>

- (1) Department of Chemistry, Université de Montréal, Montréal, Québec, Canada
- (2) Department of Physics and Atmospheric Science, Dalhousie University, Halifax, Nova Scotia, Canada
- (3) Department of Physics, University of Toronto, Toronto, Ontario, Canada
- (4) Climate Research Division, Environment and Climate Change Canada, Toronto, Ontario, Canada
- (5) Watershed Hydrology and Ecology Research Division, Environment and Climate Change Canada, Victoria, British Columbia, Canada

\*Correspondence to: Patrick L. Hayes ([patrick.hayes@umontreal.ca](mailto:patrick.hayes@umontreal.ca))



## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

### 2.2. Abstract

Since aerosols are an integral part of the Arctic climate system, understanding aerosol radiative properties and the relation of these properties to each other is important for constraining aerosol radiative forcing effects in this remote region where measurements are sparse. *In situ* measurements of aerosol size distribution, aerosol light scattering and absorption were taken near Eureka (80.05°N, 86.42°W), on Ellesmere Island, in the Canadian High Arctic over three consecutive years to provide insights into radiative properties of Arctic aerosols.

Our results show that both aerosol number concentration and optical properties were much higher in winter and spring compared to summer and fall with hourly total extinction reaching levels of 40 and 30  $\text{Mm}^{-1}$  for 405 and 870 nm, respectively. The winter/spring aerosol enhancement is directly related to the Arctic haze phenomenon. During periods of Arctic haze, we find that the single scattering albedo (SSA) at 405 nm is generally higher and more stable than that determined at 870 nm, with values ranging between 0.90 - 0.99 and 0.79 - 0.97, respectively. Events with elevated absorption coefficients ( $B_{abs}$ ) exhibit generally an absorption Ångström exponent (AAE) of around 1 suggesting that black carbon (BC) is the dominant absorbing aerosol for the measurement period. AAE values close to 2 occurring with scattering Ångström exponent (SAE) values near 0 and SAE values below 0 observed occasionally in December indicate a potential contribution from mineral dust aerosols in late fall and early winter. The apparent real and imaginary parts of the complex refractive index at 405 nm for Arctic haze were retrieved using Mie theory and have been found to range between 1.6 – 1.9 and 0.002 – 0.02, respectively. The low imaginary component indicates very weak intrinsic absorption compared to BC-rich aerosols.

Systematic variabilities between different aerosol optical and microphysical properties depend strongly on the given wavelength. SSA at 405 nm shows a strong inverse dependence with  $B_{abs}$ , because  $B_{abs}$  correlates positively with the imaginary component of the refractive index. On the other hand, SSA at 870 nm correlates with scattering coefficient ( $B_{sca}$ ) and not with  $B_{abs}$  due to a greater sensitivity to the ambient particle size distribution for 870 nm scattering. Smaller particles with higher SAE that are prevalent during less polluted periods

## **Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

only weakly scatter 870 nm leading to lower SSA when  $B_{sca}$  is also low. The importance of the particle size distribution to the observed optical properties is further illustrated by the finding that  $B_{sca}$  for 870 nm light correlates most strongly with particle number concentrations above 500 nm whereas  $B_{sca}$  for 405 nm light correlates most strongly with particle number concentrations above 300 nm.

Lastly, the influence of atmospheric transport on aerosol optical properties was explored. FLEXPART back-trajectories show that lower aerosol SSA and higher  $B_{abs}$  correspond to air masses which are more influenced by Eurasian and Alaskan regions, including regions known to have important BC emissions. This work emphasizes the important variability in Arctic aerosol optical properties during winter and spring, which is likely due to changes in source regions.

### **2.3. Introduction**

Significant changes to climate have been observed in the Arctic during recent decades, with average Arctic temperature increasing at a rate approximately twice the global rate.<sup>1-2</sup> Arctic ecosystems and inhabitants are strongly impacted by the amplified warming and the unprecedented retreat of sea ice extent and thickness.<sup>3-5</sup> These changes within the Arctic environment are largely driven by anthropogenic greenhouse gas induced warming and local feedback mechanisms. In addition, recent observations and climate simulations indicate that anthropogenic and natural atmospheric aerosols are also important contributors to climate change in the region.<sup>6-10</sup> The decline in aerosol concentrations over the past century has likely contributed to the rapid Arctic warming and sea ice melt.<sup>11-13</sup>

These short-lived climate forcing agents may perturb the radiative balance of the Earth in various ways. Aerosols can affect the regional and global climate directly through absorption and scattering of incoming solar radiation, causing warming or cooling of the atmosphere, respectively. The direct climatic effect of aerosols is particularly significant in the Arctic, because of the high surface albedo of snow- and ice-covered surfaces, which enhance the radiative impact of aerosols.<sup>14-15</sup> Light absorbing aerosols, such as black carbon (BC), can reduce the surface albedo when deposited on snow or ice, and thus more quickly lead to warming and ice melt.<sup>16-18</sup> Aerosols can also influence indirectly the Earth's energy balance by altering the radiative properties of clouds, their formation, and precipitation, with the indirect effect typically causing a cooling of the surface.<sup>19-21</sup> In the Arctic, anthropogenic aerosol particles are particularly known to increase the thermal emissivity of thin clouds encountered in winter and spring, which contributes exceptionally to a warming of the surface.<sup>22-24</sup> These aerosol-radiation-cloud interactions demonstrate that the Arctic regional climate is uniquely sensitive to aerosol radiative forcing.

While greenhouse gas radiative forcing is quite well understood, the magnitude and sign of the aerosol forcing effect in the Arctic is still highly uncertain.<sup>15</sup> The largest uncertainties in the estimation of the total radiative forcing in the Arctic result from the heterogeneous distribution of aerosol particles due to various processes occurring during transport and within the Arctic<sup>7, 25-26</sup>, the complex aerosol feedback mechanisms resulting

## **Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

from the high surface albedo and cloudiness<sup>16, 24, 27-28</sup>, and the strong seasonal variations in aerosol concentration, size distribution, and composition owing to a wide variety of aerosol sources and sinks<sup>29-30</sup>. The long-term measurements of aerosol optical properties, together with measurements of aerosol physical and chemical properties, are fundamental for investigating the radiative effects of aerosols in the High Arctic. Currently, data sets on aerosol optical properties and their distribution throughout the Arctic are sparse.<sup>30</sup> Additional long-term measurements of Arctic aerosol optical properties are needed to guide the improvement of many climate and atmospheric chemical transport models that struggle to reproduce and predict the radiative impact of aerosols both at the surface and throughout the troposphere in the Arctic climate system.<sup>8, 31-32</sup> In particular, current aerosol models display often widely varying and poor skill in simulating high-latitude pollutant concentrations, especially in late winter and spring, and do not capture their seasonality.<sup>33-36</sup>

Airborne and surface observations in the Arctic have long reported that tropospheric aerosols undergo a pronounced seasonal cycle in both intensive and extensive properties. Aerosol loading and optical properties in the Arctic atmosphere typically reach a maximum in winter and early spring, forming the so-called Arctic haze, and a minimum in summer and fall.<sup>25, 29-30, 37</sup> This distinct inter-seasonal transition from Arctic haze to lower aerosol loadings in summer and fall is driven by changes in transport patterns and removal mechanisms.

The Arctic atmosphere can be best described as a closed “dome” of cold air where aerosols, and other pollutants, are transported along surfaces of constant potential temperature with minimum values in the boundary layer. The polar dome resists intrusions of air from outside and tends to isolate the Arctic troposphere.<sup>38-39</sup> In winter and spring, an expansion of the polar dome to the lower latitudes occurs, thus exposing the lower troposphere in the Arctic to more southerly anthropogenic emissions that can undergo long-range transport into the polar region. In addition, the stabilization of the lower troposphere by strong temperature inversions, and the extremely cold and dry conditions inside the polar dome considerably reduce aerosol removal processes (i.e. wet and dry depositions of aerosols), thus trapping anthropogenic pollutants and allowing for their accumulation.<sup>6, 40-41</sup> These anthropogenic aerosols likely have undergone significant chemical aging before entering the Arctic, with a size distribution dominated by accumulation-mode particles.<sup>29, 42</sup> In summer, the polar dome

## **Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

contracts northward, inhibiting transport into the Arctic from mid-latitude sources. The return of vertical exchange due to radiative heating and an increase in wet scavenging in summer also contribute to the isolation of the Arctic atmosphere by hindering aerosol transport from northern mid-latitudes, keeping the near surface Arctic atmosphere free of anthropogenic aerosols.<sup>40, 43-44</sup> The summertime aerosol population becomes instead dominated by nucleation and Aitken mode particles freshly formed and locally emitted from natural sources.<sup>29, 45-46</sup>

The first official reports on the annual occurrence of visibility-reducing haze aerosols in the Arctic in the early spring, now referred to as Arctic haze, were published in the 1950s.<sup>47-49</sup> However, the anthropogenic origin of Arctic haze events was only confirmed later in the early 1980s.<sup>50-53</sup> Studies have also shown that the Arctic haze aerosols observed near the surface are composed predominantly of sulfate and particulate organic matter (OA) followed by small fractions of ammonium, BC, nitrate, mineral dust, sea salt, and traces of heavy metals.<sup>26, 54-58</sup>

Considerable progress has been made over the last few decades to identify the sources and transport pathways of Arctic pollution. At lower altitudes, the dominant source regions for Arctic haze have been identified in the 1980s as northern Europe and Siberia and the attribution of major BC and sulfate sources has not changed since then, despite large declines in emissions in these regions over the last 40 years.<sup>8, 31, 59-61</sup> Sharma, et al.<sup>62</sup> observed that most aerosol constituents at Alert decreased between 28% and 80% over the period from 1980 to 2013, including sulfate and BC which declined by 52%. The recent global decrease in anthropogenic aerosol concentrations follows the introduction of more stringent industrial emission laws and cleaner technologies in Europe and North America, as well as the demise of the former Soviet Union during the early 1990s.<sup>7, 62-64</sup> Contributions from East and South Asian emissions dominate at higher altitudes and have increased over the past years due to rapid economic growth.<sup>40, 61, 65-67</sup> Thus, the total atmospheric burden may have increased since observations of Arctic haze began.<sup>59</sup> It is also believed that the loss of sea ice, the multiplication of forest fires in the mid-latitudes, and increases in Arctic local emissions due to shipping, tourism, and gas flaring will result in significant changes in both anthropogenic and natural aerosols found at high latitudes in the coming years.<sup>9, 64</sup>

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

Presently, most of our current knowledge about the seasonal cycle, chemical composition and sources of aerosols in the High Arctic is based on measurements recorded during short-term ground-based field campaigns or at a limited number of monitoring stations throughout the Arctic.<sup>68-69</sup> Many of these measurements were or are currently located within the boundary layer, where aerosol observations are spatially less representative of the atmospheric column and less useful for satellite validation.<sup>70</sup> On the other hand, satellite measurements are relatively limited when it comes to evaluating aerosol radiative forcing due to the high surface albedo in the Arctic environment and the long periods of darkness during the polar night, which leads to large uncertainties in satellite-retrieved parameters.<sup>30, 71</sup> Although high-altitude measurements from aircraft campaigns provide valuable insight into vertical profiles of aerosols, such work is limited by the short duration of the campaigns, which calls into question the representativeness of the aircraft aerosol data and does not allow the study of aerosol climatology or seasonality.<sup>30, 70</sup> Ground-based remote-sensing instruments such as sun photometers have limited use due to the absence of sunlight during the winter or under cloudy conditions and can only retrieve optical and microphysical parameters like the single scattering albedo with high uncertainties.<sup>30, 72</sup> In this study, year-round *in situ* observations of aerosol optical and microphysical properties were made at an observatory at 610 m altitude in the Canadian High Arctic, which provides the opportunity to make continuous measurements of aerosol properties in the free troposphere and in layers aloft decoupled from the surface, depending on the time of the year.<sup>73-76</sup>

Here, we present multi-year *in situ* observations of aerosol optical properties and size distributions near Eureka, at high altitude, in the Canadian High Arctic, with a focus on the period between December and May (inclusive) when Arctic Haze is frequently observed. Springtime aerosols have been extensively studied in the Arctic atmosphere, but less is known about the fall and winter seasons and several questions related to aerosol sources and composition still remain unanswered.<sup>68-69</sup> The potential role of BC in Arctic warming is also responsible for the renewed interest in Arctic haze aerosols recently.<sup>35, 65, 67, 77-78</sup> This work focuses on distinct episodic events of high anthropogenic pollutant concentrations occurring in winter and spring. Previous observations of Arctic pollution aerosols, ground-based and airborne, usually deal with the variability of Arctic haze aerosols on an annual or monthly

## **Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

timescale. Our approach is a deeper quantitative analysis of the optical and microphysical characteristics of Arctic haze aerosols, which uses hourly and daily data. Variation of aerosol optical properties on these shorter timescales is more sensitive to synoptic and meteorological conditions, than the mean annual or monthly pattern, and allows better characterization of the variability in aerosol properties. To the best of our knowledge, no long-term studies have examined, at this level of detail, Arctic haze aerosol optical properties, including the relationships between optical properties and size distributions and determining effective index of refraction. This work thus provides better insight into the optical and microphysical properties of Arctic haze aerosols needed to better understand their climate impacts.

## 2.4. Material and methods

### 2.4.1. Site description

*In situ* aerosol measurements presented in this work were primarily conducted at the Ridge Lab of the Polar Environment Atmospheric Research Laboratory (PEARL).<sup>76</sup> The PEARL Ridge Lab is situated on a mountain ridge, at an elevation of 610 m above sea level (a.s.l.), on the northwest coast of Slidre Fjord, near Eureka, on Ellesmere Island, in the Canadian Arctic Archipelago (80.05°N, 86.42°W). The site is located in a region with a dry and cold climate. Temperatures at the PEARL Ridge Lab are slightly warmer than sea level in winter and spring (Figure 2-13). This temperature inversion suggests that measurements are sampling aerosols aloft that are decoupled from the surface. The surroundings are characterized by mountainous land and fjords typical for Ellesmere Island, which are mainly ice or snow covered during winter and spring (i.e. December to May). The wintertime polar night, with no direct solar radiation, lasts from mid-October through mid-February at Eureka. The measurement site is near ECCC's Eureka Weather Station, which lies at 10.4 m a.s.l. and is about 15 km southeast of the Ridge Lab. The high-altitude and location of the PEARL Ridge Lab ensures that any influence from pollution emitted from the Eureka Weather Station is minimized throughout the year. The PEARL Ridge Lab is thus remote and far from any other local or regional air pollution sources. The distance to the nearest settlement, Grise Fiord, an Inuit hamlet at the southern tip of Ellesmere Island, is about 410 km.

### 2.4.2. Instrumentation

The PEARL Ridge Lab was equipped to perform continuous measurements of physical (number size distribution) and optical (scattering and absorption coefficients) properties of the total aerosol population. Aerosol size distribution data were obtained from three instruments: a Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS, model 3034, TSI Inc., Shoreview, MN, USA), an Optical Particle Counter (OPC, model GT-526S, Met One Instruments Inc., Grants Pass, OR, USA), and an Aerodynamic Particle Sizer (APS, model 3321, TSI Inc.). The number size distributions for particles in the diameter range of 10 to 487 nm (electrical mobility diameter,  $D_m$ ) are recorded in 54 channels every 3 min with the SMPS,



## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

operating at a flow rate of 1 L min<sup>-1</sup>. These measurements have been ongoing since August 2015, except for a few technical interruptions. The OPC provides aerosol number and size distributions at diameters between 0.3 and 10 µm (optical diameter,  $D_o$ ) in six channels at the same time interval as the SMPS. The OPC instrument operates with a flow rate of about 2.8 L min<sup>-1</sup>, and measurements have also been ongoing since August 2015, except for a gap between mid-October 2018 and mid-August 2019. The APS measures aerosol number concentrations every 1 min in 52 channels covering the particle diameter range from 0.5 to 20 µm (aerodynamic diameter,  $D_a$ ) at a flow rate of 5 L min<sup>-1</sup>. Aerosol sampling with the APS was carried out continuously from November 2018 to July 2019, filling the gap in the OPC measurements.

Aerosol light scattering ( $B_{sca}$ ) and absorption ( $B_{abs}$ ) coefficients at wavelengths of 405 and 870 nm were measured directly using two Photoacoustic Extinctionmeters (PAX, Droplet Measurement Technologies Inc., Longmont, CO, USA), operated at 1 L min<sup>-1</sup>. PAX measurement data were analysed for the period from 6 August 2016 to 18 August 2019. The principles and additional information on the PAX instrument are given in detail in the Supporting information and the literature.<sup>79-82</sup>

Measurements from all instruments used in this work were performed with no aerosol size selection before the instruments (e.g. cyclones or impactors), except for the SMPS, which was equipped with an impactor to remove large particles outside the instrument measurement range. No heating was applied to the sampled air, since the temperature inside the aerosol instruments is much warmer than the outside temperature. Despite the absence of a heated inlet, the relative humidity (RH) of the sampled air throughout the year is consistently less than 30% (RH < 30%) due to the change in temperature from the cold and very dry Arctic atmosphere to the interior of the PEARL Ridge Lab. Thus, the hygroscopic effects on the measurements were minimized. All instruments were connected to a common aerosol inlet, which is described in more detail in the Supporting information. Particle transmission efficiencies for the suite of optical instruments have been calculated using a Particle Loss Calculator<sup>83</sup> and are shown in Figure 2-15 and Figure 2-16 in the Supporting information. The transmission efficiency curve for the SMPS is described in Tremblay, et al.<sup>46</sup>.

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

### 2.4.3. Data processing

The primary data sets from the several instruments used for this study are comprised of *in situ* number concentrations for different particle sizes (expressed as  $\text{cm}^{-3}$ ), as well as scattering and absorption coefficients at two distinct wavelengths (expressed as  $\text{Mm}^{-1}$ ), which are used to calculate additional optical parameters as described below. The particle number size distribution and optical data were quality controlled to ensure correct functioning of the instrument and to determine the validity of the measurements. The data associated with abnormal peaks, calibrations, instrument error, excessive noise or recorded during instrument maintenance were rejected from this analysis. In order to facilitate direct comparisons between the measurements, all data were converted to hourly or daily averages. The least orthogonal distance method was used for all linear regressions presented in this article.

The measured scattering and absorption coefficients are extensive aerosol optical properties that depend on the concentration of the sampled aerosol. Intensive aerosol optical properties presented in this analysis are independent of the aerosol concentration and can be calculated from the measurements of aerosol scattering and absorption coefficients. The four intensive radiative properties of aerosols determined here include the single scattering albedo (SSA), the scattering Ångström exponent (SAE), the absorption Ångström exponent (AAE), and the complex refractive index ( $m$ ). The single scattering albedo is defined as the ratio of scattering to extinction, as given in Eq. (1). SSA is one of the key aerosol parameters determining the sign and magnitude of aerosol radiative forcing, and thus, the potential for aerosol particles to cool or warm the atmosphere.<sup>84-85</sup>

$$\text{SSA} = \frac{B_{sca}}{B_{sca} + B_{abs}} = \frac{B_{sca}}{B_{ext}} = 1 - \frac{B_{abs}}{B_{ext}} \quad (1)$$

Ångström exponents are defined in the power law relationship between scattering or absorption and wavelength given in Eq. (2):

$$B_{sca,abs} = K \lambda^{-AE} \quad (2)$$

where  $K$  is a wavelength independent constant and AE represents the scattering or absorption Ångström exponent. SAE describes the wavelength dependence of aerosol scattering and is inversely proportional to the particle size such that larger aerosol particles are typically

**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

associated with small SAE values, while smaller aerosol particles imply relatively large SAE values.<sup>71</sup> The magnitude of the SAE parameter usually ranges from 0 (Mie's regime) to 4 (Rayleigh's regime), but negative values have previously been observed for some mineral dust particles like hematite (e.g. Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). This might occur if aerosol particles that are present do not have wavelength independent refractive indices.<sup>86-87</sup> SAE values higher than 2 represent an aerosol distribution dominated by fine particles, while SAE lower than 1 implies light scattering dominated by coarse particles.<sup>88</sup> In practice, SAE can be calculated from measurements at two wavelengths using the following simplified equation:

$$SAE(\lambda_1, \lambda_2) = - \frac{\ln\left(\frac{B_{sca,\lambda_1}}{B_{sca,\lambda_2}}\right)}{\ln\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)} = - \frac{\ln(B_{sca,\lambda_1}) - \ln(B_{sca,\lambda_2})}{\ln(\lambda_1) - \ln(\lambda_2)} \quad (3)$$

where  $B_{sca,\lambda_1}$  and  $B_{sca,\lambda_2}$  are the light scattering coefficients at wavelength  $\lambda_1$  and  $\lambda_2$ , respectively. AAE represents the wavelength dependence of aerosol light absorption and depends strongly on chemical composition, particle size, and possibly the morphology of the absorbing aerosols.<sup>84-85, 89-90</sup> Therefore, each aerosol type has a characteristic range of AAE values. For instance, AAE values for black carbon particles are typically around 1, whereas AAE values higher than 1.5 are related to the presence of a mineral dust and/or brown carbon (BrC) particles mixed with BC.<sup>85, 91-93</sup> Similarly, AAE can be written explicitly as:

$$AAE(\lambda_1, \lambda_2) = - \frac{\ln\left(\frac{B_{abs,\lambda_1}}{B_{abs,\lambda_2}}\right)}{\ln\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)} = - \frac{\ln(B_{abs,\lambda_1}) - \ln(B_{abs,\lambda_2})}{\ln(\lambda_1) - \ln(\lambda_2)} \quad (4)$$

$B_{abs,\lambda_1}$  represents the light absorption coefficient at wavelength  $\lambda_1$  and  $B_{abs,\lambda_2}$  represents the absorption coefficient at wavelength  $\lambda_2$ .

The complex refractive index is an important optical property of aerosols that is used both in calculating the shortwave radiative budget and aerosol climate effect.<sup>15</sup> This optical parameter is closely related to the aerosol chemical composition and mixing state.<sup>94-95</sup> The real ( $n$ ) and the imaginary ( $k$ ) parts of the complex refractive index ( $m$ ) indicate the scattering and absorption of light, respectively, by the particulate matter.

$$m = n - ik \quad (5)$$

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

The inverse Mie or optical closure calculation for extracting refractive indices from measured optical and size distribution data is a well-known problem.<sup>96</sup> The contour intersection inversion method of PyMieScatt, a Mie algorithm code written in Python and described in Sumlin, et al.<sup>97</sup>, was used here to retrieve the wavelength-dependent refractive indices. Refractive index retrievals of aerosol particles from measured optical properties and size distributions are described in the Supporting information.

Extensive and intensive aerosol optical properties were determined for specific time intervals corresponding to different Arctic haze events listed in Table 2-2. In order to identify episodes of elevated Arctic haze, the PAX405 was used as the main reference to determine when the aerosol event occurred. For clear identification of each Arctic haze event in this study, we used the following criteria: 1) the event starts when the hourly scattering signal at 405 nm rises at least  $4 \text{ Mm}^{-1}$  above the background ambient level over a period no longer than 24 hours and ends when the signal returns to less than  $4 \text{ Mm}^{-1}$  above the background over the same short period of time, 2) the event lasts over a period of more than 9 hours in order to capture only the most important events, and 3) accumulation mode particles (i.e. particles with diameters from 100 to 500 nm) dominate the number size distribution. When applying these criteria, it is important to note that the  $B_{sca}$  ambient background at 405 nm varies over weeks, months, and years, so a threshold was established as a guideline below which the values of  $B_{sca}$  were considered to be background. This  $B_{sca}$  threshold was set at  $3 \text{ Mm}^{-1}$  from December to February,  $5 \text{ Mm}^{-1}$  from March to April, and  $2 \text{ Mm}^{-1}$  in May. The higher ambient background level in early spring accounts for the general prevalence of Arctic haze during this period (Figure 2-1).

### 2.4.4. Backward air mass trajectories

Back-trajectory models are commonly used, comprehensive tools to investigate the effect of air mass transport on atmospheric constituents at measurement sites. To determine potential sources of aerosol particles present in air masses arriving at the PEARL Ridge Lab, air mass back-trajectory analysis was conducted for the Arctic haze events using the FLEXible PARTicle (FLEXPART) Lagrangian dispersion model.<sup>98</sup> Each of the FLEXPART simulations was run in backward mode for 10 days before the start of the event, listed in Table 2-2. The

## **Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

choice of 10 days is somewhat subjective, but it was deemed long enough to reflect the atmospheric lifetime of Arctic aerosols and to capture transport from most of the source regions. For reference, the mean residence time of aerosols near the surface within the Arctic has been previously reported to be 7 days in winter and higher during the polar night.<sup>68</sup> A total of 40 000 air-tracer particles were released for each Arctic haze event back-trajectory calculation at 3 m above ground from the measurement point with 1° x 1° resolution and an upper planetary boundary layer at 50 m. These releases were split over three-hour intervals starting with the first reanalysis compilation time (00/06/12/18 UTC) after the start of the event, until the end of the event. The meteorological data used for the back-trajectory analyses were the 6-hourly products from the National Centers for Environmental Prediction Climate Forecast System Version 2 (NCEP-CFSv2). In backwards mode, the FLEXPART model calculates a potential emission sensitivity (PES) which represents the amount of time that an air mass passed through a given grid cell and was thus influenced by emissions. PES in a given grid cell is proportional to the residence time of a tracer in that cell and is expressed in units of s<sup>-1</sup>.

## 2.5. Results and Discussion

### 2.5.1. Aerosol microphysical properties

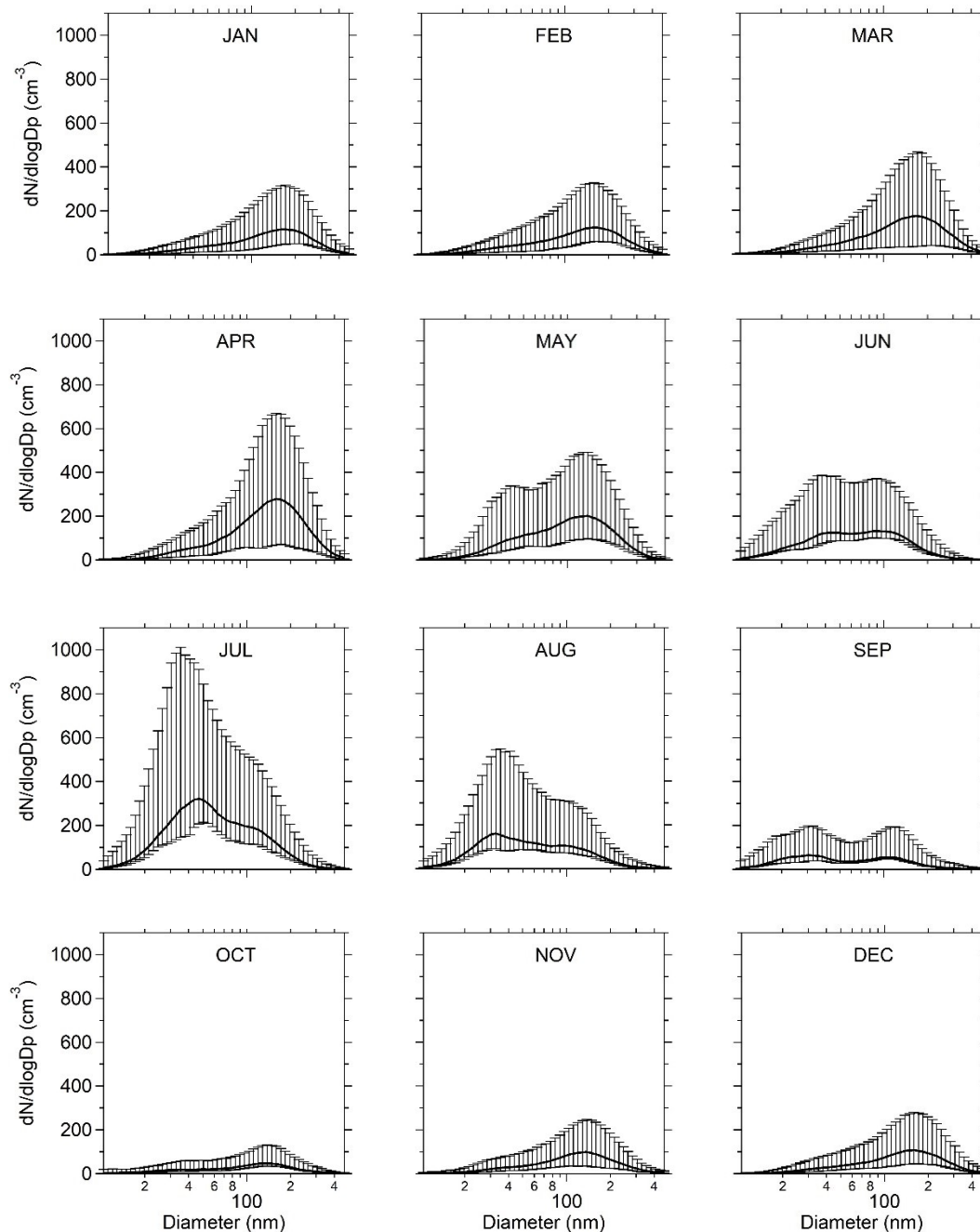


Figure 2-1 Monthly median particle number size distributions for the SMPS from December 2016 to November 2019. The whiskers show the 20-80th percentile of the measurements.

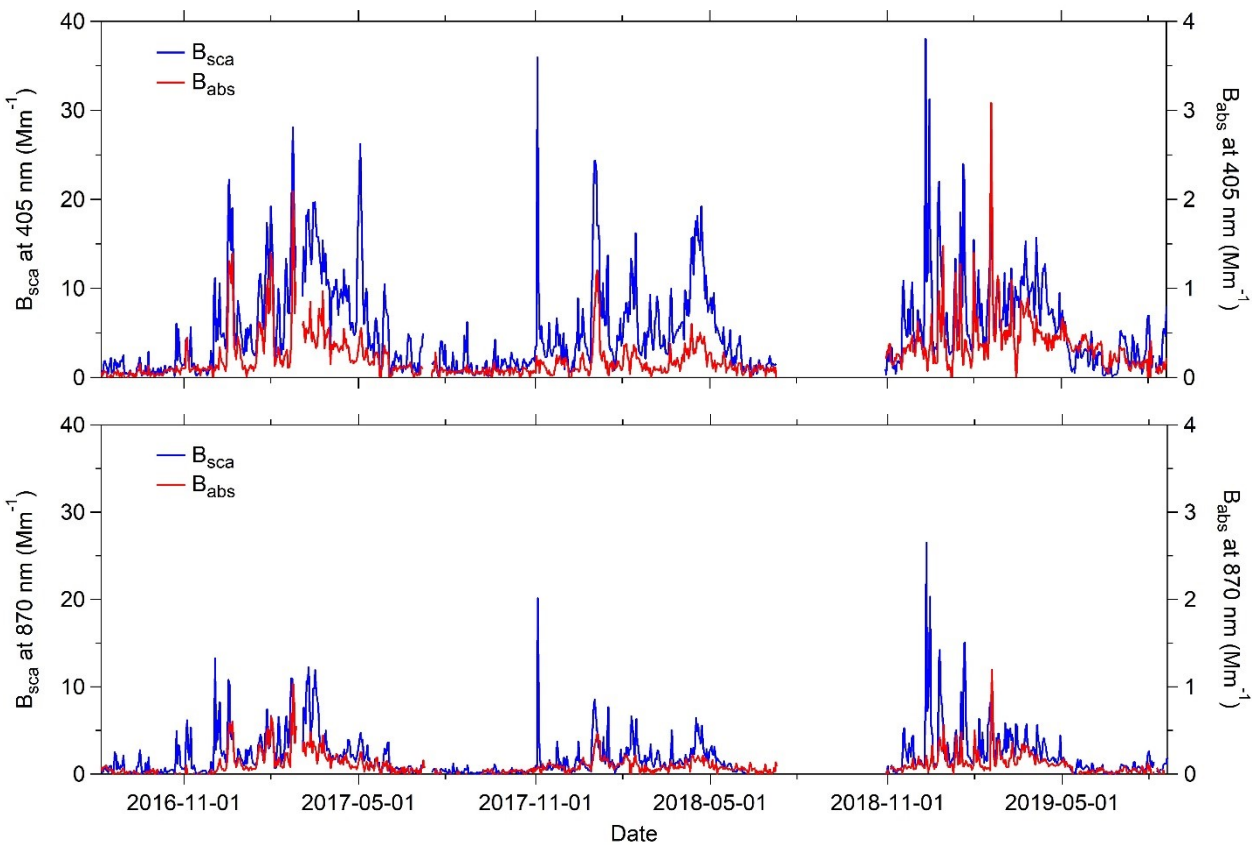
## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

Figure 2-1 displays the 2016 – 2019 monthly median aerosol number distributions and the 20 - 80<sup>th</sup> percentile ranges from the SMPS at the PEARL Ridge Lab covering the whole measurement period. Overall, the aerosol size distributions are dominated by relatively high number concentrations of almost mono-modal accumulation-mode particles during the winter (DEC-JAN-FEB), spring (MAR-APR-MAY) and fall (SEP-OCT-NOV) months. Such size distributions indicate that the aerosol population measured at Eureka in winter and spring is rather “aged” and far from its sources.<sup>37</sup> Conversely, a pronounced Aitken mode in the aerosol size distribution is commonly observed during the Arctic summer (JUN-JUL-AUG) months, suggesting a dominance of newly formed and locally emitted particles. New particle formation (NPF) processes have been previously studied at the PEARL Ridge Lab.<sup>46</sup> The monthly averages are similar to those observed at other Arctic stations during the same period, such as at Alert (82.50°N, 62.34°W; 210 m a.s.l.) and Station Nord in northern Greenland (81.60°N, 16.66°W; 24 m a.s.l.).<sup>25, 29</sup> Number concentrations for particles with diameters larger than 0.5 µm that were measured by the OPC are not shown due to their low concentration.

### 2.5.2. Temporal variation in aerosol extensive properties

Daily averaged light scattering ( $B_{sca}$ ) and absorption ( $B_{abs}$ ) coefficients at 405 and 870 nm wavelengths covering the whole measurement period are provided in Figure 2-2. Both the aerosol scattering and absorption at wavelengths of 405 and 870 nm show a strong seasonality at the PEARL Ridge Lab with values that are highest in winter and spring, coincident with the Arctic haze phenomenon, and lowest in summer and fall. These findings are consistent with observation at most other monitoring sites throughout the Arctic such as Alert, Barrow in Alaska (71.32°N, 156.61°W; 11 m a.s.l.), and Zeppelin Mountain on the island of Svalbard in Norway (78.91°N, 11.89°W; 475 m a.s.l.).<sup>30, 54, 71, 99</sup>

**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**



**Figure 2-2 Daily mean scattering ( $B_{sca}$ ) (blue line) and absorption ( $B_{abs}$ ) (red line) coefficients at wavelengths of 405 and 870 nm measured by the two PAX instruments.**

Figure 2-2 also shows substantial day-to-day variability in extensive optical properties during the Arctic haze season. A closer look at the time series of  $B_{sca}$  and  $B_{abs}$  reveals that the haze is observed during irregular episodes, called here “Arctic haze events”, and not continuously. During three years of continuous aerosol measurements, 93 Arctic haze events were identified in winter and spring at the PEARL Ridge Lab. Information on the events, including the event number, and the start and end times of the event, is detailed in Table 2-2. In general, haze layers start to be seen in December at the PEARL Ridge Lab and end in May. The events can last a few hours to several days (Table 2-2). It is observed that the average temperature difference ( $\Delta T$ ) between the altitude of the PEARL Ridge Lab (i.e. 610 m a.s.l.) and sea level during each Arctic haze episode coincides with a positive gradient (i.e.  $\Delta T > 0$ ) (Figure 2-19). This corresponds to strong temperature inversions and suggests that Arctic haze aerosols are generally observed in atmospheric layers aloft that are decoupled from the



**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

surface. Over the sampling period, approximately 30 events per year were observed at the PEARL Ridge Lab. A typical example of an Arctic haze event is displayed in Figure 2-20.

Statistics of the hourly mean values of the aerosol light scattering and absorption during the time period from December to May from 2016 to 2019 are listed in Table 2-1. Although the wavelengths used and times covered are somewhat different in previous studies, averaged  $B_{sca}$  and  $B_{abs}$  values at 405 and 870 nm reported here are still comparable to those measured at other Arctic sites like Barrow and Alert.<sup>30, 71</sup> It should be noted that the six months from June to November are not included in the statistical calculations since the scattering and absorption coefficients were near 0 indicating little or no Arctic Haze, as expected.

**Table 2-1 Statistics of aerosol optical properties for the winter and spring periods based on hourly averaged data from 2016 to 2019. The averages are expressed as arithmetic means, and SE represent the standard errors.**

Variable	Mean	SE	Percentiles				
			5	25	50	75	95
$B_{sca}$ at 405 nm ( $Mm^{-1}$ )	7.93	0.05	0.10	3.78	6.48	10.61	18.93
$B_{abs}$ at 405 nm ( $Mm^{-1}$ )	0.362	0.004	0.01	0.14	0.28	0.47	1.05
$B_{sca}$ at 870 nm ( $Mm^{-1}$ )	2.93	0.03	0.34	1.19	2.02	3.58	8.83
$B_{abs}$ at 870 nm ( $Mm^{-1}$ )	0.283	0.001	0.09	0.19	0.25	0.34	0.57
SSA at 405 nm (dimensionless)	0.9518	0.0007	0.87	0.94	0.96	0.98	1.00
SSA at 870 nm (dimensionless)	0.86	0.01	0.65	0.84	0.88	0.93	0.98
SAE (dimensionless)	1.485	0.005	0.62	1.11	1.50	1.84	2.33
$N_{total}$ ( $cm^{-3}$ )	135	1	36.74	73.75	113.53	175.16	291.37

### 2.5.3. Relationship between aerosol optical and physical measurements

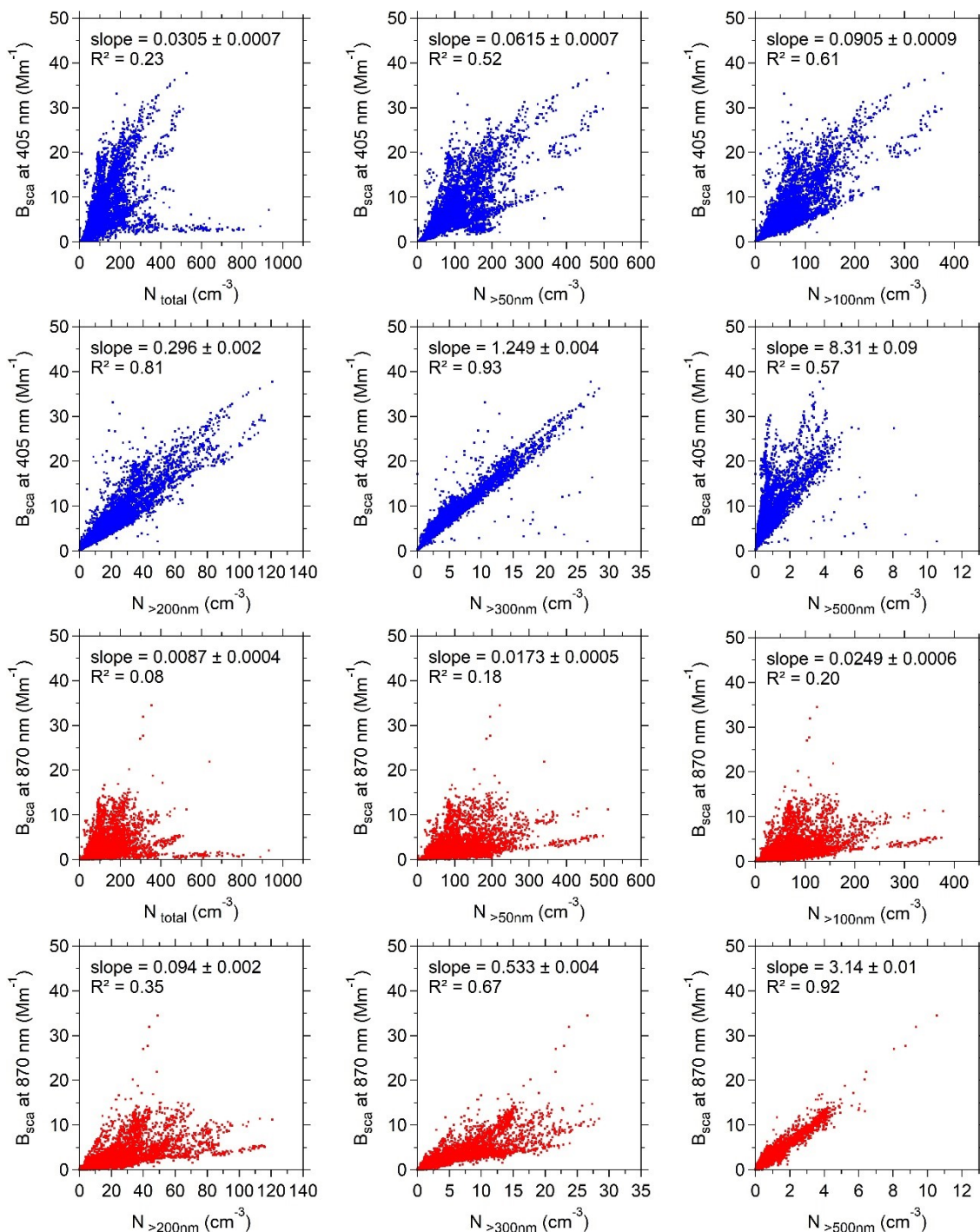


Figure 2-3 Correlation between scattering coefficient at wavelengths of 405 (blue) and 870 (red) nm and number concentration in the diameter range of >50 nm, >100 nm, >200 nm, >300 nm, >500 nm, and 10 nm - 20  $\mu m$  for winter-spring from 2016 to 2018.

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

To examine the dependence of aerosol optical properties on particle size, light scattering at 405 and 870 nm are plotted as a function of the number concentration of particles larger than a certain threshold size, including  $> 50$ ,  $> 100$ ,  $> 200$ ,  $> 300$ , and  $> 500$  nm, as well as the entire measured size range from 10 nm to 5000 nm. The relation between  $B_{sca}$  and the number concentration shown in Figure 2-3 clearly shows a mostly increasing trend in the correlation, as measured by  $R^2$ , when moving to larger particle size thresholds. It is well-known that nucleation and Aitken mode aerosols are generally not important contributors to total aerosol light scattering.<sup>30, 100</sup> Furthermore, some aerosols in the accumulation-mode range do not scatter light efficiently if the particle diameter is much smaller than the wavelength of the incident light. At 405 nm, scattering correlated most strongly with  $> 300$  nm particle number concentrations ( $R^2 = 0.86$ ). At 870 nm, it is the correlation between  $B_{sca}$  and  $> 500$  nm particles ( $R^2 = 0.82$ ) that is the strongest compared to other size ranges. No clear correlation is found between scattering and the total particle number concentration for the two wavelengths. The different correlations for the two wavelengths suggest that scattering coefficients at 405 and 870 nm are mostly dependent on particles with diameters larger than 300 nm and 500 nm, respectively, and thus 405 nm scattering is more sensitive to smaller particles with diameters between 300 – 500 nm.

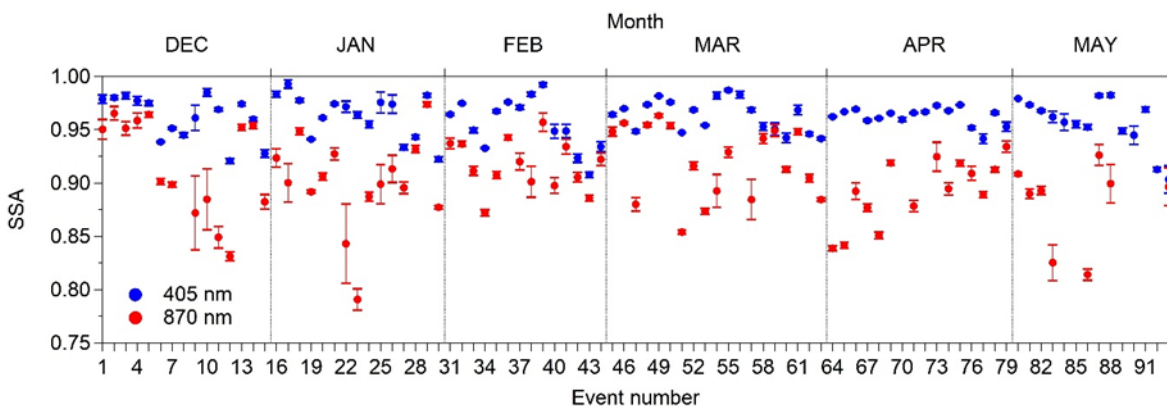
### 2.5.4. Variability of intensive aerosol optical properties

#### 2.5.4.1. Single Scattering Albedo

SSA and other intensive optical properties of aerosol particles observed in Arctic sites are often expressed based on monthly, annual or even decadal median or mean values of the aerosol parameter.<sup>30, 71, 99, 101</sup> The main and obvious issue with this analysis is that information is lost with respect to how optical properties relate to specific aerosol types, the origin of emissions, and transport pathways. Figure 2-4 displays the mean values of SSA and their standard errors at wavelengths of 405 and 870 nm for specific Arctic haze events that occurred in winters and springs from 2016 to 2019 at the PEARL Ridge Lab. Events are placed in chronological order based on the day and month they occurred to highlight intra-annual variability. Hourly averaged  $B_{sca}$  and  $B_{abs}$  for each event were converted to SSA using Eq. (1), and the mean SSA was calculated by taking the event average of the hourly SSA values.

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

SSA values calculated at the two wavelengths exhibit a surprising lack of correlation ( $R^2 = 0.15$ ) in this property at 405 and 870 nm. At the same time, there is no clear intra-annual or inter-annual trend in SSA values. Statistics of the hourly SSA data at 405 and 870 nm for the months between December and May are listed in Table 2-1 for the PEARL Ridge Lab.



**Figure 2-4** Average values of SSA at wavelengths of 405 (blue circle) and 870 nm (red circle) calculated for different Arctic haze events during each month for 2016-2019. Error bars express the standard error. The period of each event is summarized in Table 2-2.

SSA values at 405 nm for all events are found to be relatively high and constant most of the time. The three-year average SSA at the site is 0.95 with 5<sup>th</sup> and 95<sup>th</sup> percentiles of 0.87 and 1.00, respectively. On the other hand, SSA values at 870 nm are lower and more variable than those at 405 nm. SSA at this wavelength has an average of 0.86 with 5<sup>th</sup> and 95<sup>th</sup> percentiles of 0.65 and 0.98, respectively. The lower SSA values at 870 nm can be explained by the fact that the aerosol particles have a lower scattering efficiency at a longer wavelength. The variability indicates that the BC contribution to the aerosol changes considerably, possibly related to changes in the extent to which distant sources impact the PEARL Ridge Lab. Large variation in mean BC concentrations at Alert particularly in all winter and spring months have previously been reported.<sup>59, 102-103</sup> These relatively high SSA values are evidence for aerosols with high sulfate, sea salt, or OA content.<sup>56-58</sup> During the NETCARE 2015 campaign study, observations from the *Polar 6* aircraft for flights conducted over Alert and Eureka in springtime showed that measured non refractory sub-micron aerosol mass at lower altitude is dominated by sulfate (74%), followed by OA (20%), ammonium (4%), and BC (1%). The authors have also demonstrated the prevalence of sea salt (i.e. NaCl) in sub-micron aerosol in the lower polar dome.<sup>26</sup> Similarly, Nielsen, et al.<sup>55</sup> also found that sulfate and OA account for

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

66% and 24%, respectively, of the sub-micrometer aerosol particles at Station Nord in late winter and early spring.

### 2.5.4.2. Scattering and Absorption Ångström Exponents

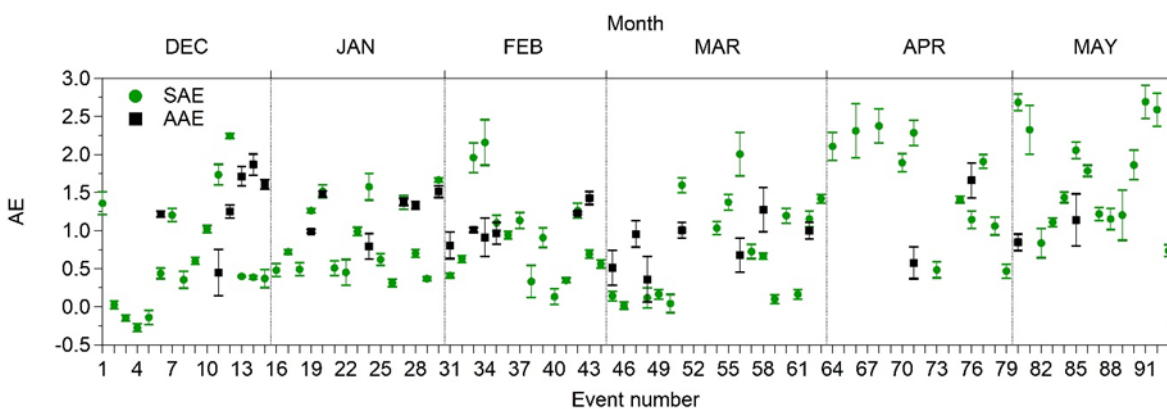
The time series of  $B_{sca}$  and  $B_{abs}$  coefficients measured at the PEARL Ridge Lab were examined to derive the corresponding values of SAE and AAE. In this analysis for an event, AAE values were obtained by quantifying the ratio of absorption coefficients at 405 and 870 nm with linear regressions and using the resulting values in Eq. (4) following the same procedure described in Moosmuller, et al. <sup>86</sup>. The regression slope, giving the ratio  $B_{abs,405} / B_{abs,870}$ , was used rather than calculating directly the AAE from the hourly  $B_{abs}$  data in order to reduce the influence of the measurement noise at lower aerosol loading on the AAE calculation. Similarly, SAE values were quantified from the slope of the linear regression of the scattering coefficients, yielding the ratio  $B_{sca,405} / B_{sca,870}$ , and using Eq. (3). For the determination of both AAE and SAE, regression analyses that have a  $R^2$  lower than 0.30 were systematically rejected. The resulting values of Ångström exponents calculated for the 405 and 870 nm wavelength pair are shown in Figure 2-5. SAE shows a large variability from December to May, ranging from -0.3 to 3.0, which is indicative of a wide range of particle sizes. The large range of SAE values at the PEARL Ridge Lab reflects differences in aerosol sources, transport, or removal. The lower SAE values in winter clearly indicate the predominance of “aged” accumulation-mode particles typical of Arctic haze, possibly mixed with mineral dust or sea salt, while the higher SAE values in late spring are consistent with the presence of accumulation-mode particles combined with a smaller fraction of Aitken-mode particles (Figure 2-1).

The return of sunlight observed after polar sunrise is expected to increase atmospheric photochemical oxidation of organic compounds emitted from snow and ice or from marine sources (including dimethyl sulfide) leading to well-known shifts in particle size distributions towards smaller sizes through particle nucleation and growth.<sup>68</sup> In addition to enhanced photochemical activity due to increased solar radiation, decreasing sea-ice extent increases marine-influenced aerosol formation beginning in late spring, which plays an important role in particle growth events that shape the particle size distribution.<sup>46, 104</sup> Therefore, higher

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

concentrations of smaller particles emitted by local sources contribute significantly to the optical properties of the aerosol population in addition to the accumulation-mode particles from Arctic Haze, especially in May, by increasing the SAE values.

In contrast, the lowest SAE values were recorded at the beginning of December 2016 with slightly negative values (events 3 - 5) indicating a higher scattering coefficient at 870 nm. These negative SAE values may be associated with large mineral dust particles that are occasionally observed during fall in clean Arctic conditions. Indeed, many studies have previously reported negative SAE values for dust aerosols having hematite content.<sup>86, 105-106</sup> On the other hand, these events with the lowest SAE exhibit high SSA at 405 and 870 nm, suggesting marine sea salt aerosol contributions. Costabile, et al.<sup>107</sup> pointed out that coarse mode marine aerosols can generate values of SSA > 0.95 and SAE < 0.5. Many studies also reported similar observations at coastal and oceanic sites.<sup>85, 92</sup> These probable dust and/or sea salt events are included in this analysis to see how they compare to other Arctic haze events.



**Figure 2-5** SAE (green circle) and AAE (black square) values for the 405 and 870 nm wavelength pair calculated for different Arctic haze events during each month for 2016-2019. Error bars express the standard deviation. Ångström exponents are obtained from the slope of a linear regression analysis of  $B_{sca}$  or  $B_{abs}$ .

In the absence of direct information on the aerosol chemical composition, AAE values can be used to determine the dominant absorbing aerosol type in the aerosol population. In Figure 2-5, AAE values are found to be relatively close to 1, indicating that BC is the principal absorbing particle type in winter and spring at the PEARL Ridge Lab.<sup>84-85</sup> AAE values near 1 are also consistent with BC originating mainly from incomplete combustion of fossil fuels and biofuels, rather than natural or anthropogenic biomass burning (e.g. wildfires and agricultural

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

fires).<sup>108</sup> Fossil fuel emissions from northern Asia are the dominant source of aerosols in the Arctic lower troposphere during winter at both Alert and Barrow.<sup>59, 64, 67</sup> Emissions of BC from vegetation fires are considerable in late spring to early summer, but over the Arctic these aerosols are typically transported to the middle and upper troposphere.<sup>65, 67, 109</sup> AAE is sensitive to the particle size distribution, morphology, and coating when BC particles are aged, which explains the moderate variation in the AAE values observed in our results over the course of the year.<sup>90</sup>

The three last events of December (events 13 – 15) have AAE values larger than 1.5 and SAE of less than 0.5, suggesting a significant influence of dust particles at the beginning of the polar night.<sup>92, 110-112</sup> In addition, values of SAE less than 0 measured in December support the idea that the first month of winter at this location is occasionally impacted by some dust-related events. Groot, et al.<sup>113</sup> and Fan<sup>114</sup> have both reported a distinct increase of mean dust concentration observed in September, October, and November at Alert, demonstrating that dust influence is important in the fall in the Canadian High Arctic. Observations from long-term monitoring stations have observed the presence of dust in Arctic haze, suggesting that dust events might also occur in mid-winter and spring at the PEARL Ridge Lab but at a lower proportion and masked by the haze.<sup>50, 54, 113, 115</sup> This may explain the lack of a strong dust signal (i.e.  $SAE < 0$  and  $AAE > 2$ ) in winter and spring. It is therefore impossible to confirm if December has stronger dust incursions than other months of the year, since identifying the presence or absence of dust aerosol during relatively polluted conditions is difficult. Furthermore, the optical instruments deployed at the PEARL Ridge Lab detect particle sizes up to  $\sim 5 \mu\text{m}$ , which could reduce the dust influence on SAE and AAE values determined from our measurements.

Since absorption measured in the Arctic is consistently low, a limited number of AAE values could be reported here for the Arctic haze events. It is apparent that events having a reported AAE value are more abundant in winter than in spring. This is due to generally higher mean  $B_{abs}$  coefficient values for Arctic haze events in winter versus spring allowing more consistent determination of AAE using the procedure described above. The transition from high wintertime BC concentrations to low concentrations in the spring is likely controlled by temperature-dependent removal processes such as wet scavenging by

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

precipitation. More efficient wet deposition in the mid-latitudes and within the Arctic in late spring leads to substantial reductions in the BC burden in the Arctic troposphere.<sup>44, 69, 109</sup>

### 2.5.4.3. Real and Imaginary Index of Refraction

Figure 2-6 shows retrieved values of complex index of refraction from ground-based measurements for selected Arctic haze events. It should be noted that the retrieval of the refractive index was restricted to the 405 nm wavelength due to poorer signal-to-noise in the  $B_{abs}$  measurement at 870 nm, which did not allow accurate calculations. Only indices that were retrieved successfully from the combined datasets using the contour intersection inversion method described above are shown. Overall, the apparent real and imaginary components of the refractive index at 405 nm ranged mainly between 1.6 and 1.9, and between 0.002 and 0.02, respectively. The real refractive indices are slightly higher than what is expected for the sulfate-soot mixtures of Arctic Haze measured at Zeppelin Mountain ( $\lambda = 532$  nm) and Barrow ( $\lambda = 400$  nm), which typically show a refractive index of 1.50 – 1.60.<sup>116-118</sup> BC, whose refractive index is between 1.75 – 0.63i and 1.95 – 0.79i at 550 nm may explain the high  $n$  values observed in the Arctic haze.<sup>119</sup> Although it varies by an order of magnitude, our imaginary refractive index is however very low, which is not consistent with BC representing a substantial proportion of the particle mass. The refractive indices at 405 nm for sulfate, OA, sea salt, and most mineral dust particles are slightly lower compared to our results.<sup>94, 120-122</sup> However, hematite shows higher  $n$  values, and may explain the slightly higher than expected real refractive index.<sup>123</sup>

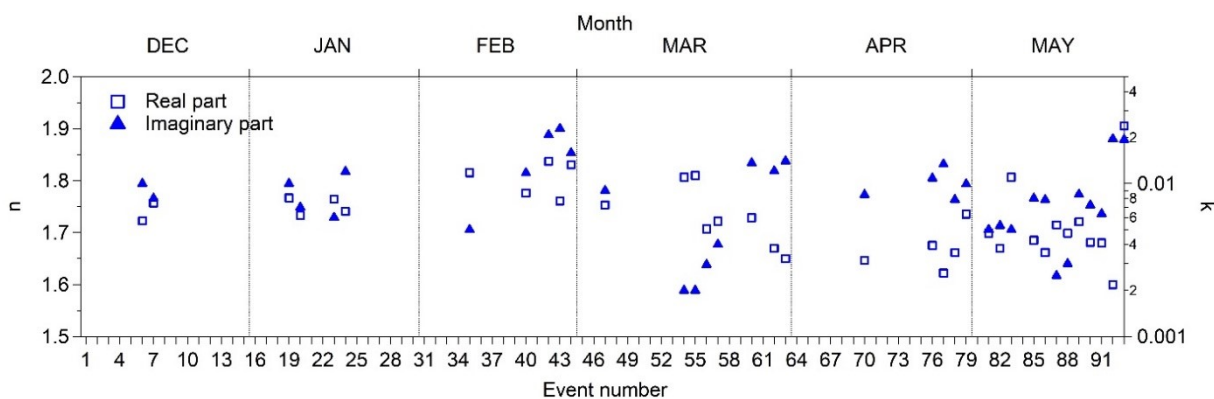


Figure 2-6 Real ( $n$  : blue square) and imaginary ( $k$  : blue triangle) refractive indices at a wavelength of 405 nm calculated for different Arctic haze events during each month for 2016-2019.



## **Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

An alternative explanation is an error in our measurements. As shown in Figure 2-15 and Figure 2-16, the particle losses in the instruments for the largest sizes could lead to a calculated refractive index that is biased high. To evaluate the effect of particle losses on the retrieved indices, the size distributions of particles used in the inverse Mie calculation were limited to a maximum diameter of 2 or 5  $\mu\text{m}$ . The results show very little difference in the retrieved refractive index between the two size cuts with  $\Delta n \leq 0.05$  (see Table 2-3). This sensitivity study indicates that losses of larger particles in our inlet, or the slightly different transmission efficiencies of the instruments and their inlets, do not significantly influence our results, because very few ambient particles have a diameter larger than 2  $\mu\text{m}$ . Finally, a low imaginary part in the index of refraction indicates weak intrinsic absorption for the ambient particles compared to pure BC, which is consistent with low absorbing aerosol concentrations measured at the PEARL Ridge Lab. Such low imaginary values are also consistent with previous studies on the optical properties of Arctic haze aerosols conducted at Zeppelin and Barrow sites.<sup>116-118, 124</sup>

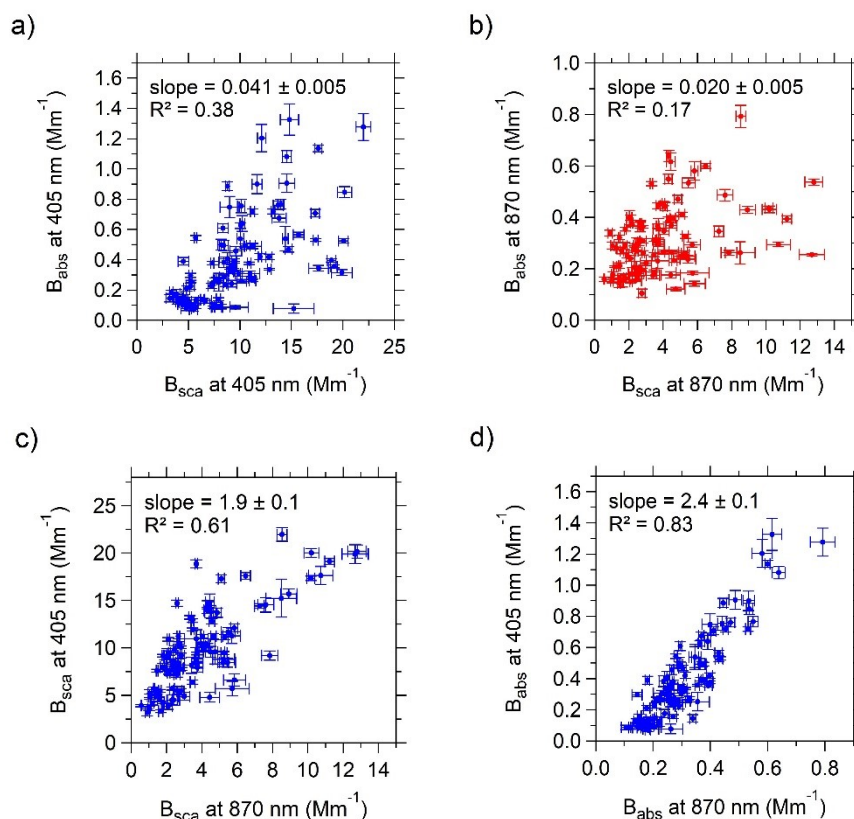
### **2.5.5. Systematic relationships among aerosol optical properties**

A better understanding of systematic variability among aerosol optical properties can be useful in validating aerosol model predictions and reducing uncertainties in algorithms for deriving aerosol optical properties from remotely sensed data.<sup>71</sup> Knowledge of the systematic changes in one aerosol property with another property can also provide insight into aerosol sources, transport, and atmospheric processes occurring in the Arctic.<sup>30, 70, 125</sup> Due to their importance and usefulness, systematic relationships between several extensive and intensive aerosol properties (i.e. light scattering and absorption, single scattering albedo, Ångström exponents, and the real and imaginary parts of the complex refractive index) were investigated for the PEARL Ridge Lab dataset at two distinct wavelengths. The systematic variability plots were created using the optical parameters determined for each Arctic haze event and are shown in Figure 2-7, Figure 2-8, Figure 2-9, Figure 2-10, and Figure 2-11. Thus, each point included in the plots corresponds to a single Arctic haze event. The standard error is also displayed for each optical property for each Arctic haze event. Some combinations of properties are not included in this study either due to the limited numbers of data points or the low level of significance in the relationships. Below, we first present a general description of

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

the systematic relationships in the next section (3.5.1), and in the subsequent section (3.5.2) a holistic interpretation of the systematic relationships is provided.

### 2.5.5.1. General description

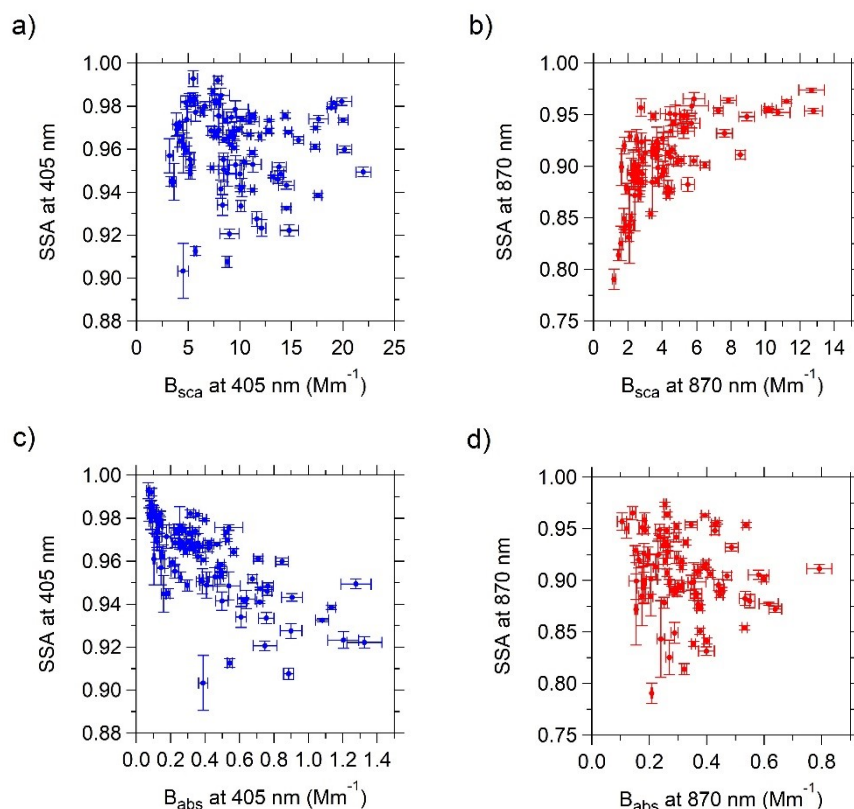


**Figure 2-7 Systematic relationships between scattering and absorption coefficients at 405 and 870 nm for all Arctic haze events from 2016 to 2019. Error bars express the standard error of the mean.**

Aerosol light scattering and absorption at 405 nm correlate, so that an increase in light scattering generally correlates with an increase in light absorption (Figure 2-7a). This correlation ( $R^2 = 0.38$ ) between  $B_{sca}$  and  $B_{abs}$  is consistent with the relative invariability of the determined SSA values as shown in Figure 2-4. The correlation between light scattering and absorption is however less obvious at 870 nm ( $R^2 = 0.17$ ), which is consistent with the greater variability in SSA values at this wavelength. These graphs are consistent with systematic relationships from most Arctic sites, including Alert, as described in Schmeisser, et al. <sup>30</sup>, although different wavelengths were used in this previous work. The scattering at 405 nm vs scattering at 870 nm relationship seems to show a much stronger correlation than the

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

two previous systematic variabilities ( $R^2 = 0.61$ ), and the absorption at 405 nm vs absorption at 870 nm relationship has a very strong correlation ( $R^2 = 0.83$ ). Average of  $B_{sca}$  and  $B_{abs}$  values for each Arctic haze events are depicted in the Supporting information (Figure 2-21).



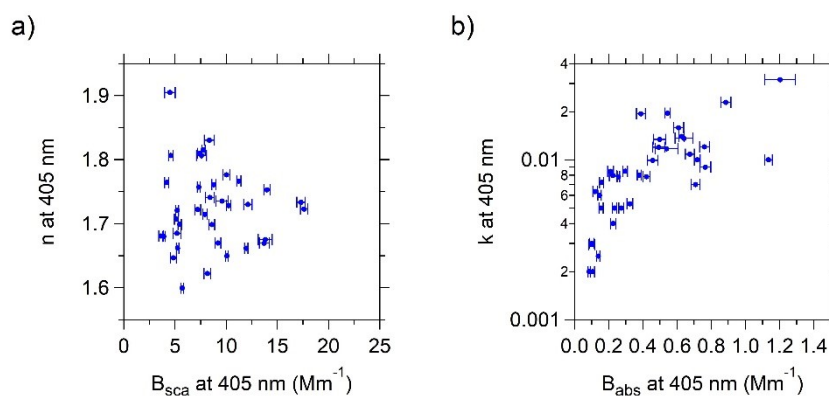
**Figure 2-8 Systematic relationships between scattering / absorption coefficients and single scattering albedo at 405 and 870 nm for all Arctic haze events from 2016 to 2019. Error bars express the standard error of the mean.**

Comparisons of SSA with the aerosol loading, as represented by light scattering and absorption, vary in different ways which depend upon the wavelength used. SSA was found to be dependent on the scattering specifically at the longer wavelength, but not at the shorter wavelength, as indicated in Figure 2-8. At 870 nm, the SSA is lowest at low aerosol loading (low  $B_{sca}$  values), and then increases until SSA values reach a plateau as aerosol loading increases. The observed low values of SSA at low aerosol loading is consistent with what was observed at most Arctic sites at 550 nm wavelength.<sup>30</sup> The same pattern was also found for high altitude mountaintop sites within the 20-50° N latitude band.<sup>70</sup> In contrast, SSA varies with absorption at 405 nm such that the highest  $B_{abs}$  values are associated with relatively low

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

SSA values. Interestingly, the SSA versus absorption plot at 870 nm does not show a clear trend in contrast to what is observed at 405 nm.

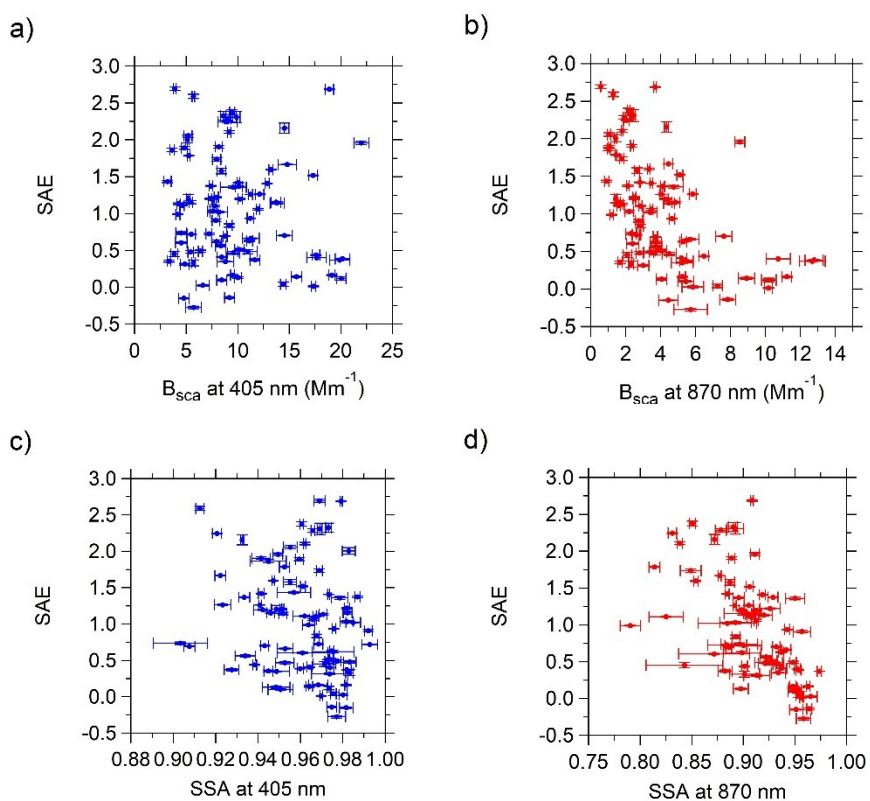
The relationships between the complex refractive index and the extensive aerosol optical properties at 405 nm are depicted in Figure 2-9. In general,  $n$  values do not change with  $B_{sca}$  values, despite a significant variation in  $n$ . In contrast, the imaginary ( $k$ ) values increase as  $B_{abs}$  values increase.



**Figure 2-9** Systematic relationships between the real part and imaginary part of the complex refractive index and the scattering and absorption coefficients at 405 nm for selected Arctic haze events from 2016 to 2019. Error bars express the standard error of the mean.

As reported in Figure 2-10a and Figure 2-10b, SAE can decrease or remain invariable as aerosol light scattering increases depending on the wavelength. At 405 nm, the Ångström exponent does not correlate with changes in scattering. This SAE vs  $B_{sca}$  relationship is in agreement with similar systematic variabilities observed for example at Alert, but contrast with those from Zeppelin Mountain and Barrow.<sup>30, 71, 99</sup> At 870 nm, a progressive shift toward lower SAE is on average observed with increasing  $B_{sca}$ . Such systematic variability is also observed for Barrow.<sup>30, 71</sup> Moreover, for  $B_{sca}$  higher than  $\sim 8 \text{ Mm}^{-1}$ , the SAE vs  $B_{sca}$  relationship at 870 nm changes and SAE values reach a floor, maintaining values on average lower than 0.5 at high particle concentrations. In Figure 2-10, the Ångström exponent exhibits a weak negative correlation with SSA at 870 nm, while no particular relationship between SAE and SSA is detected for 405 nm. Furthermore, SAE values lower than 0 largely correspond to high and constant SSA values at 405 and 870 nm.

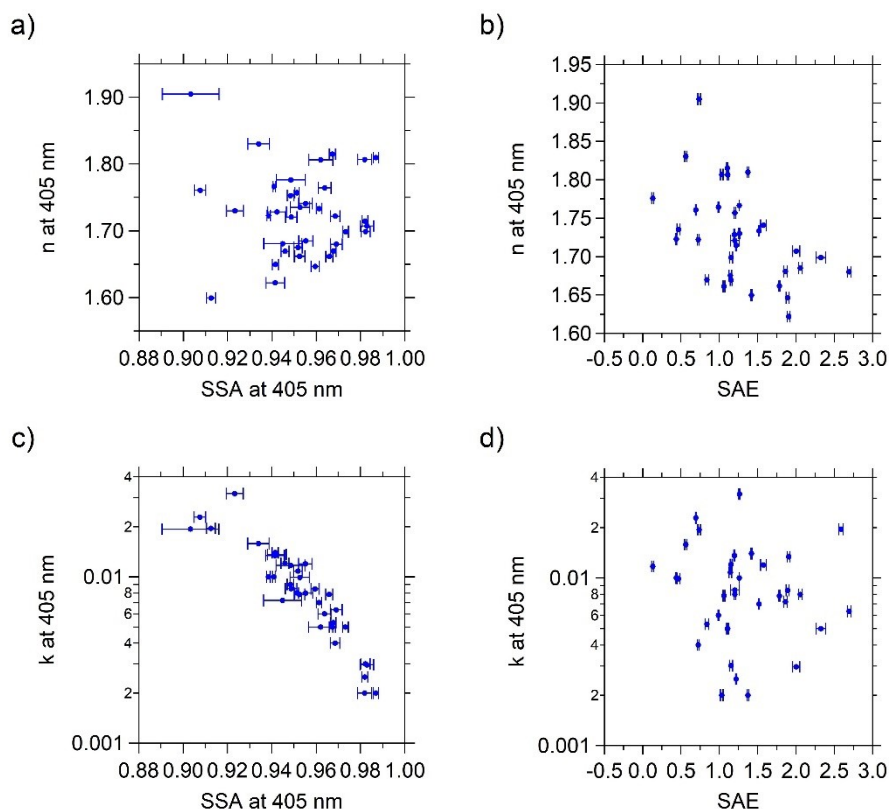
**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**



**Figure 2-10 Systematic relationships between scattering coefficients, single scattering albedo, and scattering Ångström exponent at 405 and 870 nm for all Arctic haze events from 2016 to 2019. Error bars express the standard error of the mean.**

The systematic variations of SAE and SSA with the retrieved values of both real and imaginary refractive indices at 405 nm are shown in Figure 2-11. These relationships are simply meant to confirm the systematic variabilities discussed earlier. The imaginary refractive index correlated strongly with SSA, while no clear connection between the real refractive index and SSA at 405 nm could be seen. The SSA vs  $k$  relationship is consistent with the previous SSA vs  $B_{abs}$  and  $k$  vs  $B_{abs}$  relationships at 405 nm. Inversely, the real part but not the imaginary part of the aerosol refractive index exhibits some correlation with SAE. It was not possible to establish any correlation between  $k$  and SAE likely because absorption by aerosols is more related to their mass rather than their particle size. The real part varies with SAE such that  $n$  values decrease as SAE increases (i.e. the particle size decreases).

**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**



**Figure 2-11 Systematic relationships between single scattering albedo, scattering Ångström exponent, and the real and imaginary parts of the complex refractive index at 405 nm for all Arctic haze events from 2016 to 2019. Error bars express the standard error of the mean.**

**2.5.5.2. Interpretation of the relationships between optical parameters**

The dominant absorbing aerosol type for the entire measurement period is BC, based on the excellent correlation between absorption at 405 and 870 nm, as well as the slope (corresponding to  $AAE = 1.12 \pm 0.06$ ) which is well within the range of expected values for BC or coated BC. Note that BrC and some mineral dust components containing iron oxides (i.e. hematite) have both AAE values exceeding 2, but these other absorbing aerosols seemed less important at the PEARL Ridge Lab during the study period.<sup>92, 112</sup>

In Figure 2-8, SSA at 405 nm is more correlated with  $B_{abs}$  than  $B_{sca}$ , which occurs because  $B_{abs}$  is also correlated with the imaginary part of the aerosol refractive index (Figure 2-9b), and higher  $k$  results in lower SSA (Figure 2-11c). The correlation of  $k$  and  $B_{abs}$  (anti-correlation with SSA) is most likely attributable to an increase in the BC fraction of particles. In addition, the increase in  $k$  with  $B_{abs}$  could be related to the effect that BC mixing state has

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

on aerosol optical properties. Some studies have related increases in absorption and the imaginary part of the refractive index to the thickness of the BC coating.<sup>126-128</sup> There is no dependence of SSA on light scattering at 405 nm and the Arctic haze aerosol exhibits high SSA values under both lower and higher aerosol loadings, as characterized by  $B_{sca}$  at 405 nm. A lack of correlation between  $n$  and  $B_{sca}$  is observed probably due to the fact that total aerosol concentration and size distribution are more important factors determining  $B_{sca}$ .

In contrast to 405 nm, the SSA at 870 nm is more correlated with  $B_{sca}$  than  $B_{abs}$ . This different trend is due to the lack of scattering at 870 nm from smaller particles that exist under low  $B_{sca}$  conditions (Figure 2-10b). Under low  $B_{sca}$ , the SAE increases, indicating the presence of smaller particles that do not scatter effectively at 870 nm, which causes SSA to drop. This observation also agrees with the fact that larger and more scattering aerosol particles, such as sulfate, are preferentially scavenged, and thus low loading conditions after the occurrence of wet deposition are characterized by aerosol mixtures that are smaller and contain a greater amount of absorbing BC material. In summary, the difference in the SSA vs  $B_{abs}$  relationship between the two wavelengths could be explained by decreasing particle sizes that may occur under low loadings, which would decrease scattering independently of absorption at 870 nm. SAE does not correlate with  $B_{sca}$  at 405 nm, meaning that such changes in the ambient particle size distribution has less of an impact on scattering, and thus SSA, at 405 nm.

Lastly, as previously stated, mineral dust may contribute to the observed Arctic aerosol optical properties. As shown in Figure 2-11b, low SAE correlates with high  $n$ . This suggests the influence of mineral dust, rather than sea salt aerosol, since the refractive index of sea salt is not consistent with the high values of  $n$  observed.<sup>122, 129</sup> However, events characterized by low SAE values (i.e. < 0.5) also tend to have high SSA values (i.e. > 0.95), as seen in Figure 2-10d, which suggests the presence of sea salt during these events. Overall, the systematic relationships are consistent with Arctic haze being comprised principally of relatively small absorbing particles such as coated BC or BC, but there is evidence for the presence of larger particles composed of sea salt or mineral dust, which are difficult to distinguish using only optical and sizing measurements.

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

### 2.5.6. Aerosol sources and transport

The origin of the air masses traveling over the PEARL Ridge Lab was examined using FLEXPART simulations in order to understand the influence of long-range atmospheric transport on the observed aerosol optical properties. To carry out this analysis, the Arctic haze events were categorized according to where they fall in a scatter plot of SSA vs  $B_{abs}$  (Figure 2-12). Then, the back-trajectory footprints for all the events in a category were combined and averaged. Figure 2-12 shows the difference between the averaged back trajectories when comparing periods of low SSA and high  $B_{abs}$  (Group A) against periods of high SSA and low  $B_{abs}$  (Group C). Overall, these simulations demonstrate that air masses reaching the PEARL Ridge Lab are more likely to arrive from source regions located in Siberia and Alaska's North Slope during Arctic haze events with high absorption and low SSA (i.e. Group A and B). Gas flaring, domestic heating, and industry are common aerosol emission sources in Western Siberia.<sup>67, 130</sup> The majority of aerosol emissions within the Alaskan Arctic originate from Prudhoe Bay, known as the third largest oil and gas field in North America.<sup>131</sup> Therefore, the air masses traveling through these regions carry BC generated from fossil fuel and biomass burning emissions.

In contrast, events classified in Group C seemed to be less impacted by BC, with source regions more restricted to Alaska and the Canadian Arctic Archipelago. In other words, the aerosols from this group have a lower probability of passing over the more polluted Asian and European mainland before arriving at the PEARL Ridge Lab during the winter and spring seasons, and aerosol particles were less enriched in BC, which is consistent with the lower  $B_{abs}$  and higher SSA values measured in Group C. Interestingly, the air masses corresponding to Group C also spent more time over the Arctic Ocean, which is mostly covered in sea-ice during this period. Given the site location, this can possibly provide an important source of sea-salt aerosol, and thereby increase SSA values. Sea salt-containing particles can be transported from areas of open water and produced in Arctic regions by wind-driven processes over snow and sea-ice covered areas (e.g. blowing snow and frost flowers).<sup>132-134</sup>



Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

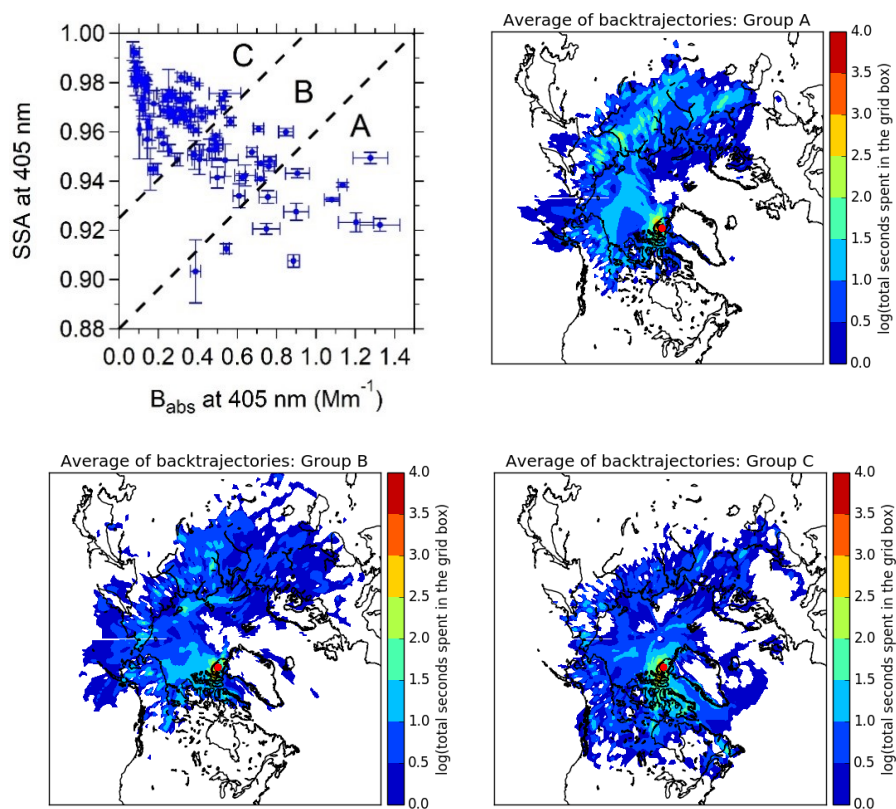


Figure 2-12 Average of 10-day back-trajectories during selected Arctic haze episodes (2016-2019) grouped into categories A (right top), B (left bottom), and C (right bottom) based on the SSA vs  $B_{abs}$  plot (left top) from Figure 2-8. The color represents mean surface sensitivities (s). The red dots indicate the location of the PEARL Ridge Lab.

## **2.6. Conclusion**

*In situ* aerosol optical properties and number size distribution have been investigated during winter and spring over three consecutive years at the PEARL Ridge Lab, a remote atmospheric observatory at 80° north in the Canadian Arctic Archipelago. As with many Arctic sites, both scattering and absorption coefficients have their maximum in winter and early spring, as a result of the Arctic haze phenomenon, and their lowest values in summer and fall.  $B_{sca}$  and aerosol number concentration correlated best when using the concentration of particles having diameters larger than 300 nm and 500 nm, for wavelengths of 405 and 870 nm, respectively. These relationships indicate that scattering at the shorter wavelength is more sensitive to particle concentrations in the 300 – 500 nm size range.

SSA values at 405 nm are found to be quite high and constant in our data, owing to the importance of scattering aerosols. SSA values at 870 nm wavelength are lower and more variable than 405 nm. Less efficient scattering of light by accumulation mode aerosols in the 300 – 500 nm diameter size range at the longer wavelength could explain the lower SSA observed at 870 nm for the Arctic haze events. The real and imaginary refractive indices at 405 nm wavelength remain generally stable during the studied period. Low imaginary indices indicate that while particles contain small amounts of BC, they have weak intrinsic absorption.

The lowest SAE values were identified in wintertime, and are associated with large aerosols like sea salt and mineral dust. The highest SAE values were observed in the late spring and are due to an increasing influence of locally produced aerosol resulting from NPF and growth, possibly from marine sources. Most AAE values are lower than 1.5 which corresponds typically to coated-BC particles. Aerosols that fall within this category are the most abundant absorbing particles detected at the PEARL Ridge Lab. Occasional periods with AAE values higher than 1.5 are generally attributed to coated-BC particles mixed with mineral dust.

Investigation of the systematic variability of aerosol optical properties provides useful information for identifying aerosol type and understanding how microphysical properties control optical properties. The major findings of this investigation are summarized in the points below.

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

(1) Anthropogenic BC is the dominant absorbing particle type during the Arctic haze season as indicated by the high correlation of absorption at 405 and 870 nm and the observed AAE values.

(2) An increase in the imaginary refractive index results in a decrease in SSA at the shorter wavelength most likely due to an increase in the relative amount of BC in particles. Imaginary refractive index shows the lowest values at very low  $B_{abs}$ , and then sharply increases with increasing absorption.

(3) Changes in scattering are more dependent on particle size distribution and concentration since the real refractive index does not illustrate a clear correlation with aerosol light scattering. Greater contribution to scattering at 405 nm by smaller particle types also explains the absence of a significant correlation of SAE with scattering at this wavelength, whereas at 870 nm periods of high SAE (i.e. smaller particle size distributions) correspond to lower values of scattering.

(4) Arctic pollution episodes characterized by both low SSA and elevated  $B_{abs}$  values at 405 nm coincide with air masses traveling more over northern regions of Europe, Russia, and Alaska, which are potential source regions for BC-containing aerosols. Back-trajectory analysis also revealed that most of the air mass residence time is spent in the North American Arctic for events exhibiting high SSA and low  $B_{abs}$ .

(5) Large and highly scattering aerosols may be associated with coarse sea salt or mineral dust particles, while smaller and more absorbing aerosols may be related to fine BC-containing particles. Events with the lowest SAE values are generally associated with higher SSA values and high  $B_{sca}$  at 870 nm; these events may be strongly influenced by sea salt or mineral dust aerosols. The presence of mineral dust aerosols during periods characterized by low SAE is further supported by the increases in the real refractive index at 405 nm with decreasing SAE.

Our understanding of aerosol optical properties in the High Arctic and their role in Arctic radiative forcing remains incomplete, in part due to a paucity of long-term optical, physical, and chemical measurements of aerosols in this remote region. The work presented here provides a comprehensive picture of the temporal and systematic variability of *in situ* aerosol optical parameters in winter and spring seasons that may also be useful to evaluate and

## **Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

improve chemical transport models. Measurements made at the PEARL Ridge Lab demonstrate clearly that relationships between extensive and intensive optical properties depend on wavelength. Therefore, our results highlight the importance of continuing to conduct simultaneous measurements of both multi-wavelength optical properties and microphysical properties of aerosols in the Arctic in order to better understand and properly represent aerosol radiative forcing in this region.

## 2.7. Supporting information

### 2.7.1. PAX data

Briefly, the PAX splits sampled air between two opposing cells: a wide-angle integrating reciprocal nephelometer and a photoacoustic resonator enabling simultaneous measurements of light scattering and absorption coefficients of aerosol particles, respectively. In the photoacoustic cell, a laser beam modulated at the resonance frequency of the acoustic cavity is passed through the aerosol stream. Aerosol particles that absorb at the wavelength of the laser beam heat up and transfer heat to the surrounding air, creating pressure waves that are detected with a sensitive microphone and converted into a light absorption signal. The photoacoustic instrument operating at 870 nm wavelength (PAX870) is highly sensitive to BC (soot) particles, while light absorption at 405 nm (PAX405) is sensitive to organic or “brown carbon” particles (BrC). In the reciprocal nephelometer, the same modulated laser beam is scattered by aerosol particles and detected using a photodiode.

As recommended by the manufacturer, a saturated salt solution (NaCl, Millipore Sigma, Burlington, MA, USA) and a propane hand torch cylinder were used to calibrate the scattering and absorption signals, respectively, of the two PAXs. Calibration of the PAX instrument is carried out at least once per year using the manufacturer recommended scattering and absorption calibration procedures. These procedures are based on extinction measurements using the measured laser power and Beer-Lambert law, which are performed at high concentrations of a purely light-scattering (NaCl) or partially absorbing particles (propane soot) in the measurement cells. During the field measurements, PAX405 and PAX870 recorded data at 1 s time resolution and the recorded data was then averaged over a 50 s sampling period. The PAXs proceeded automatically to a zeroing period that lasts 70 s after 350 s of measurements. Faraday noise filters were inserted into the PAX inlet to reduce the absorption background noise and increase the signal-to-noise ratio. The size-cut of the PAX instrument was determined to be PM<sub>4.5</sub>, using different sizes of monodisperse polystyrene latex spheres (PSLs) particles, with 100% transmission for 3 µm particles and 50% for 4.5 µm particles. The experiment with the PSL particles is described in greater detail in the next paragraph.

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

To accurately compare optical data with measured aerosol size distributions, it is critical to characterize the particle transmission efficiency through the internal plumbing of the PAX instruments. The upper size cut was determined by introducing different sizes of monodisperse polystyrene latex spheres (PSLs) into the PAX and APS instruments simultaneously. PSLs of five different sizes were used for the experiment including diameters of 1.0, 2.0, 3.0, and 4.5  $\mu\text{m}$ . 2.5% (w/w) PSL suspensions with diameter of 1.0, 2.0, and 4.5  $\mu\text{m}$  were purchased from Alfa Aesar (Ward Hill, MA, USA), while 10% (w/w) PSL particles with a diameter of 3.0  $\mu\text{m}$  was purchased from Sigma Aldrich (St-Louis, MO, USA). Dilute PSL solutions were prepared by adding a few drops of the purchased PSL solution to 20 mL of distilled water. Dilute PSL suspensions were nebulized using an aerosol generator (B & F Medical's Aeromist Nebulizer, New Rochelle, NY, USA) with pumped air (Gast, Benton Harbor, MI, USA) at a flow rate of about 3 L  $\text{min}^{-1}$ . Then, the particles generated were dried using a drying column with silica gel, purchased from Fisher Scientific (Hampton, NH, USA), before passing through to the PAX and APS. The APS was set to sample every 10 sec, while the PAX data was recorded every 1 sec. Three-minutes averaged scattering measured by the PAX at wavelengths of 405 and 870 nm was compared to the mean calculated scattering from the APS. Mie theory calculations were performed with J-Group Scattering/Extinction calculator v2.0 ([http://cires1.colorado.edu/jimenez-group/software/SizeDist\\_Scat\\_Ext\\_Mie\\_JGroup\\_Nov\\_2016\\_v2\\_0.ipf](http://cires1.colorado.edu/jimenez-group/software/SizeDist_Scat_Ext_Mie_JGroup_Nov_2016_v2_0.ipf)) using the wavelength-dependent refractive index for PSLs. Results from the PSL tests are depicted in Figure 2-14.

### 2.7.2. Additional aerosol inlet description

Ambient air sampling for all the *in situ* aerosol instruments installed in the PEARL Ridge Lab was performed with a common aerosol inlet placed 2.2 m above the roof of the measurement building. A more detailed description of the inlet system for the SMPS and OPC can be found in Tremblay, et al. <sup>46</sup> and Kuhn, et al. <sup>73</sup>. From the common aerosol inlet, the PAXs air flow passed first through approximately 6.71 m of 25.4 mm outer diameter (OD) and 22 mm inner diameter (ID) stainless steel tubing before passing through a 12.7 mm OD and 9.40 mm ID copper tube with a length of 0.36 m. Then, the sample air is divided into two parts before entering the PAX instruments. One part goes to PAX405 through 6.35 mm OD copper tube with an ID of 4.72 mm and a length of 1.73 m, and the other part goes to PAX870

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

through a 1.30 m copper tube of similar dimension. Since Fall 2018, some minor modifications have been made to the aerosol sampling set-up in the Ridge Lab. PAX870 has been moved, an APS has been installed and the OPC was disconnected from the system. The PAX405 plumbing described above is now connected to the two PAXs by 6.35 mm OD copper tubes with an ID of 4.72 mm and a length of 0.47 m. The APS flow passed from the common aerosol inlet into a 25.4 mm OD stainless steel tubing with an ID of 22 mm and a length of 6.71 m, and then through a 12.7 mm OD and 9.40 mm ID copper tube with a length of 0.66 m. This flow then entered the APS inlet through a 0.15 m ultra-torr fitting which is directly connected to the APS nozzle. The total aerosol flow rate in the inlet system is kept at 11 L min<sup>-1</sup>.

### 2.7.3. Refractive index retrieval

The computer script is based on Bohren and Huffman's treatment of Mie scattering theory.<sup>87</sup> Briefly, the retrieval method first computes  $B_{sca}$  and  $B_{abs}$  as function of  $n$  and  $k$  for a given wavelength and size distribution. Then, the contours corresponding to the measured  $B_{sca}$  and  $B_{abs}$  are identified and projected to an  $n \times k$  space where their intersection is located. The effective index of refraction associated with the measured  $B_{sca}$  and  $B_{abs}$  is determined from the intersection of the contours. Forward Mie calculations were performed using the derived refractive indices and measured size distributions and the calculated  $B_{sca}$  and  $B_{abs}$  were compared to the input values in order to validate the solution of the inversion. Measurement uncertainty is propagated through the retrieval of the effective  $m$ . Here, PyMieScatt was used to determine the effective refractive indices of Arctic aerosols using  $B_{sca}$  and  $B_{abs}$  measurements obtained at a wavelength of 405 nm, and size distribution measurements from the SMPS and OPC/APS. Some values of  $m$  are missing or have been dismissed for the following reasons: no solution of the inversion exists, two or more valid solutions were found, or the total particle number size distribution was not available or was incomplete (i.e. > 40% of the size data was lost during the averaging period for the calculation).

SMPS and OPC mean size distributions used to retrieve refractive indices were combined by using the SMPS data up to the 300 nm diameter channel and OPC data up to the

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

2 or 5  $\mu\text{m}$  channel. For reference, particle number concentration in the range of 300 – 487 nm measured by the SMPS agreed well with the concentration measured by the OPC for nearly the same particle size range (300 – 500 nm) (Figure 2-17). Because of the differences in diameter measurements between these instruments, there is a need to convert all equivalent diameters into a common diameter (physical diameter,  $D_p$ ) before merging the particle size distribution. For spherical particles that contain no void spaces,  $D_m$  is assumed to be equal to  $D_p$ .<sup>135</sup> For the OPC diameter, it is necessary to account for the fact that the index of refraction of the ambient aerosol is different from the calibration aerosol (PSLs). Thus,  $D_p$  was obtained by applying the PyMieScatt module to a single PSL calibration particle:

1. The complex  $m$  was first retrieved for some Arctic haze events from the corresponding optical measurements at 405 nm wavelength and the combined size distribution using directly  $D_o$  for the OPC.
2. The theoretical Mie efficiencies for scattering ( $Q_{sca}$ ) and absorption ( $Q_{abs}$ ) of a single PSL particle were also derived from forward Mie calculations for different  $D_o$  (i.e. 400, 750, 1500, and 3500 nm) using the 780 nm OPC laser wavelength and the refractive index for PSL ( $m = 1.6 - i0$ ).
3.  $Q_{sca}$  and  $Q_{abs}$  for a given  $D_o$  were then recalculated by replacing the refractive index for PSL by a complex  $m$  retrieved from an Arctic haze event in step 1.
4. The correct  $D_p$  was identified by varying  $D_o$  value so that the Mie efficiencies are equal or very close to their theoretical values calculated in step 2.
5. The complex  $m$  for some Arctic haze events was again retrieved using this time a size distribution expressed only as  $D_p$ .

It was found that  $D_o$  was very close to  $D_p$ , given the OPC size resolution, and that the transition from one diameter to another had little impact in the refractive index calculation (i.e.  $\Delta n < 0.1$ ) for each event at 405 nm wavelength. Furthermore, Arctic haze is dominated by accumulation mode particles that are within the SMPS size range, so values of complex  $m$  depend mostly on this particle sizing instrument.<sup>25, 29</sup>



## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

Similarly, the combined SMPS and APS size distribution was built using the full SMPS size distribution and the APS aerodynamic data up to 5  $\mu\text{m}$  (physical diameter). It is important to remember that the APS measures  $D_a$  and that its conversion to  $D_p$  requires knowing the effective density ( $\rho$ ) of the sampled particles. Converting aerodynamic particle diameter measured by the APS to a physical particle diameter is based on the following relationship:

$$D_p = D_a \sqrt{\frac{\rho_0}{\rho}} \quad (\text{S.1})$$

where  $\rho_0$  is the unit particle density ( $1 \text{ g cm}^{-3}$ ). To derive an estimated  $\rho$ , a range of assumed values are tested to match the APS data with the SMPS. An optimal effective density of about  $1.5 \text{ g cm}^{-3}$  was found, and this value is comparable with the average density for accumulation-mode particles measured at Alert in wintertime.<sup>136</sup> Furthermore, the comparison of the particle number concentration between the SMPS and APS for approximately the same particle size range (400 – 500 nm) is shown in Figure 2-18 and the agreement is satisfactory, considering the instrument uncertainties, when using the derived density. Then, SMPS-APS number concentrations were used as input for the inverse Mie calculation. We will further see that the refractive indices retrieved from the SMPS-APS size distributions are within the same range as those estimated using the SMPS-OPC size distributions, which supports our method for estimating the effective aerosol density.

**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic  
Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

**2.7.4. Supplemental tables**

**Table 2-2 List of all Arctic haze events observed at the PEARL Ridge Lab during winter and spring from 2016 to 2019.**

Event number	Date and time (UTC)	
	Start	End
E1	2016-12-01 02:00	2016-02-03 06:00
E2	2016-12-03 17:00	2016-12-04 15:00
E3	2016-12-04 17:00	2016-12-05 09:00
E4	2016-12-05 15:00	2016-12-06 00:00
E5	2016-12-06 07:00	2016-12-08 09:00
E6	2016-12-15 16:00	2016-12-21 20:00
E7	2016-12-25 20:00	2016-12-29 11:00
E8	2017-12-01 11:00	2017-12-03 23:00
E9	2017-12-11 11:00	2017-12-13 08:00
E10	2017-12-13 14:00	2017-12-15 01:00
E11	2017-12-19 12:00	2017-12-20 13:00
E12	2018-12-02 08:00	2018-12-03 07:00
E13	2018-12-08 23:00	2018-12-17 13:00
E14	2018-12-23 04:00	2018-12-25 22:00
E15	2018-12-26 10:00	2018-12-29 15:00
E16	2017-01-03 05:00	2017-01-04 02:00
E17	2017-01-04 14:00	2017-01-05 23:00
E18	2017-01-07 17:00	2017-01-08 21:00
E19	2017-01-14 21:00	2017-02-01 20:00
E20	2017-12-28 08:00	2018-01-07 00:00
E21	2018-01-08 19:00	2018-01-10 00:00
E22	2018-01-18 12:00	2018-01-19 09:00
E23	2018-01-22 04:00	2018-01-27 16:00
E24	2018-01-31 09:00	2018-02-01 06:00
E25	2018-12-31 21:00	2019-01-01 16:00

**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic  
Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

Event number	Date and time (UTC)	
	Start	End
E26	2019-01-02 14:00	2019-01-03 12:00
E27	2019-01-08 11:00	2019-01-12 01:00
E28	2019-01-14 18:00	2019-01-17 01:00
E29	2019-01-17 18:00	2019-01-20 16:00
E30	2019-01-28 22:00	2019-01-30 13:00
E31	2017-02-04 17:00	2017-02-07 18:00
E32	2017-02-12 19:00	2017-02-16 06:00
E33	2017-02-19 05:00	2017-02-23 09:00
E34	2017-02-23 21:00	2017-02-24 14:00
E35	2018-02-01 17:00	2018-02-06 18:00
E36	2018-02-07 04:00	2018-02-14 14:00
E37	2018-02-19 05:00	2018-02-22 00:00
E38	2018-02-23 13:00	2018-02-24 14:00
E39	2018-02-26 06:00	2018-02-28 03:00
E40	2019-02-02 02:00	2019-02-04 12:00
E41	2019-02-06 09:00	2019-02-07 16:00
E42	2019-02-12 06:00	2019-02-19 06:00
E43	2019-02-21 00:00	2019-02-25 19:00
E44	2019-02-28 15:00	2019-03-01 06:00
E45	2017-03-04 07:00	2017-03-05 18:00
E46	2017-03-06 19:00	2017-03-11 01:00
E47	2017-03-11 00:00	2017-03-12 10:00
E48	2017-03-13 17:00	2017-03-14 21:00
E49	2017-03-15 10:00	2017-03-18 10:00
E50	2017-03-18 16:00	2017-03-19 13:00
E51	2017-03-23 16:00	2017-03-25 06:00
E52	2017-03-26 09:00	2017-03-28 07:00
E53	2017-03-28 15:00	2017-04-01 04:00

**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic  
Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

<b>Event number</b>	<b>Date and time (UTC)</b>	
	<b>Start</b>	<b>End</b>
E54	2018-03-03 17:00	2018-03-04 16:00
E55	2018-03-05 02:00	2018-03-09 14:00
E56	2018-03-13 03:00	2018-03-14 13:00
E57	2018-03-19 07:00	2018-03-23 04:00
E58	2019-03-02 08:00	2019-03-03 11:00
E59	2019-03-04 05:00	2019-03-05 05:00
E60	2019-03-06 06:00	2019-03-11 08:00
E61	2019-03-12 19:00	2019-03-15 05:00
E62	2019-03-23 03:00	2019-03-26 00:00
E63	2019-03-28 08:00	2019-04-02 04:00
E64	2017-04-01 19:00	2017-04-06 02:00
E65	2017-04-06 10:00	2017-04-08 21:00
E66	2017-04-10 15:00	2017-04-11 10:00
E67	2017-04-14 20:00	2017-04-16 10:00
E68	2017-04-16 13:00	2017-04-18 10:00
E69	2017-04-18 13:00	2017-04-21 13:00
E70	2018-04-02 10:00	2018-04-03 20:00
E71	2018-04-03 21:00	2018-04-06 04:00
E72	2018-04-06 04:00	2018-04-09 01:00
E73	2018-04-09 18:00	2018-04-10 07:00
E74	2018-04-10 08:00	2018-04-13 01:00
E75	2018-04-13 19:00	2018-05-02 09:00
E76	2019-04-03 10:00	2019-04-05 01:00
E77	2019-04-09 04:00	2019-04-10 03:00
E78	2019-04-10 05:00	2019-04-14 22:00
E79	2019-04-27 23:00	2019-04-28 22:00
E80	2017-04-28 22:00	2017-05-05 01:00
E81	2017-05-05 02:00	2017-05-06 03:00

**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic  
Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

<b>Event number</b>	<b>Date and time (UTC)</b>	
	<b>Start</b>	<b>End</b>
E82	2017-05-07 17:00	2017-05-10 10:00
E83	2017-05-10 22:00	2017-05-12 16:00
E84	2017-05-12 21:00	2017-05-13 18:00
E85	2017-05-14 14:00	2017-05-15 14:00
E86	2017-05-16 14:00	2017-05-22 04:00
E87	2018-05-02 13:00	2018-05-06 03:00
E88	2018-05-06 04:00	2018-05-08 02:00
E89	2018-05-14 01:00	2018-05-15 10:00
E90	2018-05-20 15:00	2018-05-23 04:00
E91	2018-05-28 07:00	2018-05-31 23:00
E92	2019-05-03 13:00	2019-05-05 19:00
E93	2019-05-15 14:00	2019-05-16 07:00

**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic  
Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

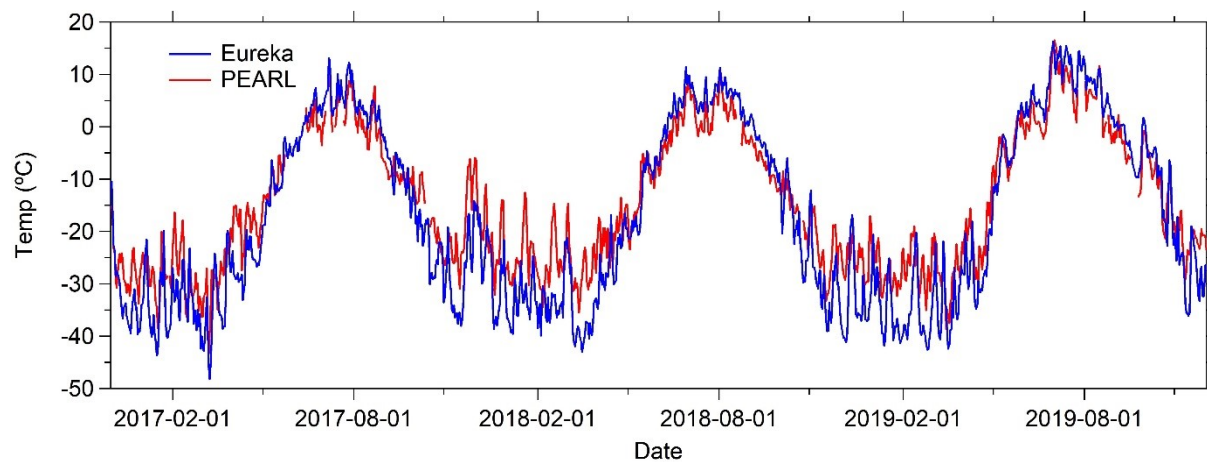
**Table 2-3 The real (*n*) and imaginary (*k*) parts of the complex refractive indices retrieved from aerosol size distributions with an upper size cut of 5 or 2  $\mu\text{m}$  and using a wavelength of 405 nm.**

Event number	Refractive indices			
	5 $\mu\text{m}$ size cut		2 $\mu\text{m}$ size cut	
	<i>n</i>	<i>k</i>	<i>n</i>	<i>k</i>
E6	1.72	0.01	1.75	0.01
E7	1.76	0.008	1.78	0.006
E19	1.77	0.01	1.82	0.012
E20	1.73	0.007	1.72	0.001
E23	1.76	0.006	1.78	0.007
E24	1.74	0.012	1.75	0.012
E35	1.82	0.005	1.85	0.005
E40	1.78	0.012	1.78	0.012
E42	1.84	0.021	1.85	0.022
E43	1.76	0.023	1.76	0.023
E44	1.83	0.016	1.84	0.016
E47	1.75	0.009	1.73	0.001
E54	1.81	0.002	1.82	0.002
E55	1.81	0.002	1.82	0.002
E56	1.71	0.003	1.71	0.003
E57	1.72	0.004	1.74	0.004
E60	1.73	0.014	1.73	0.014
E62	1.67	0.012	1.67	0.012
E63	1.65	0.014	1.65	0.014
E70	1.65	0.008	1.65	0.009
E76	1.68	0.011	1.68	0.011
E77	1.62	0.013	1.62	0.014
E78	1.66	0.008	1.66	0.008
E79	1.74	0.01	1.74	0.01
E81	1.70	0.005	1.71	0.005

**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

Event number	Refractive indices			
	5 $\mu\text{m}$ size cut		2 $\mu\text{m}$ size cut	
	<i>n</i>	<i>k</i>	<i>n</i>	<i>k</i>
E82	1.67	0.005	1.69	0.007
E83	1.81	0.005	1.85	0.006
E85	1.69	0.008	1.70	0.009
E86	1.66	0.008	1.68	0.01
E87	1.71	0.003	1.72	0.003
E88	1.70	0.003	1.70	0.003
E89	1.72	0.008	1.75	0.012
E90	1.68	0.007	1.69	0.008
E91	1.68	0.006	1.68	0.007
E92	1.60	0.02	1.60	0.02
E93	1.90	0.02	1.91	0.02

**2.7.5. Supplemental figures**



**Figure 2-13 Daily mean temperature (°C) measured at Eureka Weather Station (blue line) and PEARL Ridge Lab (red line).**

Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

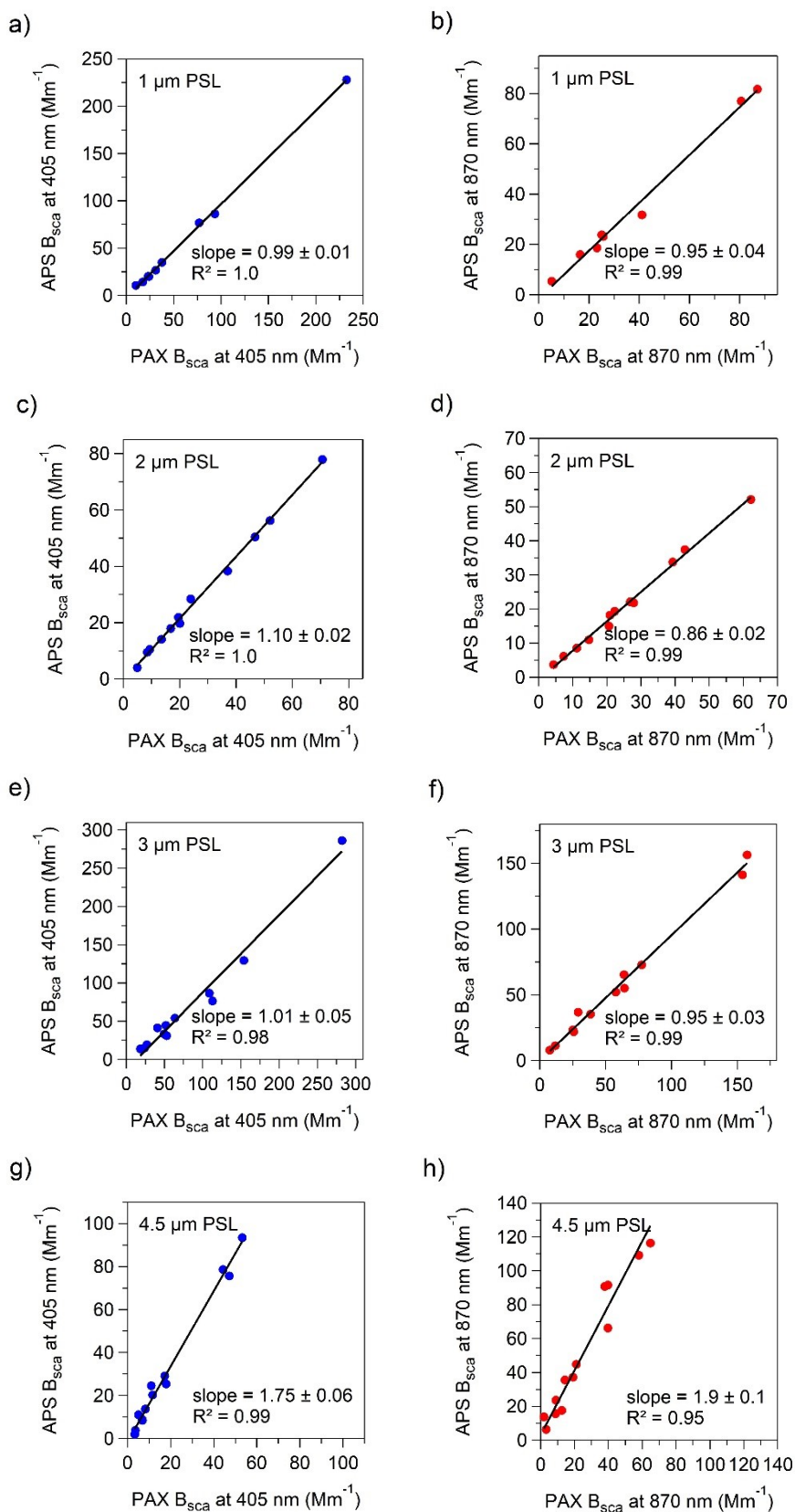


Figure 2-14 Correlation between calculated (APS) and measured (PAX) mean scattering coefficients at wavelengths of 405 and 870 nm for 1, 2, 3, and 4.5 μm polystyrene latex spheres (PSL). The deviation from a slope of 1 for the largest particle sizes is due to particle transmission losses within the PAX instruments.



Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

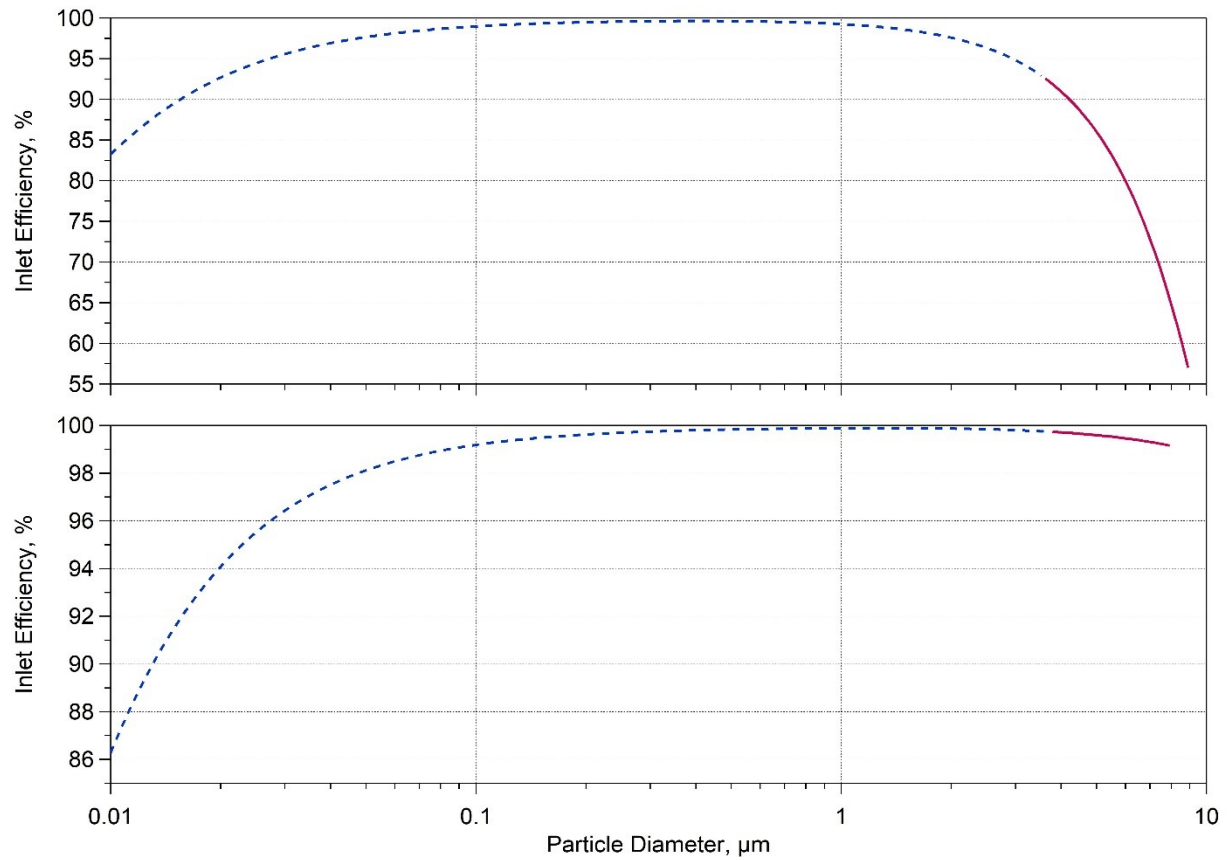


Figure 2-15 Inlet particle transmission efficiency for the OPC (top), and the APS (bottom).

Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

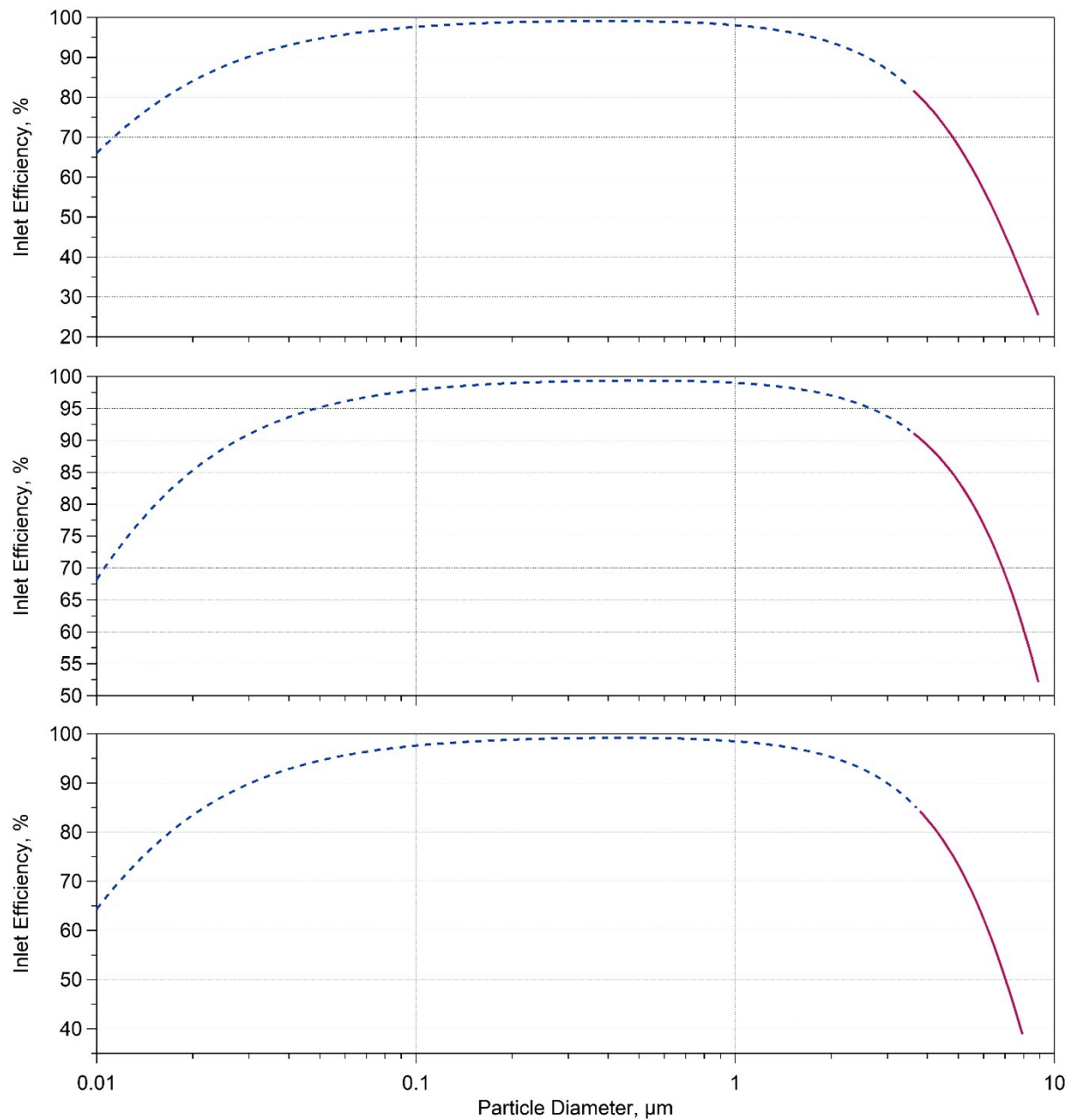


Figure 2-16 Inlet particle transmission efficiency for the PAX405 (top) and PAX870 (middle) for the first two years of measurements, and the two PAXs (bottom) for the last year.

Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

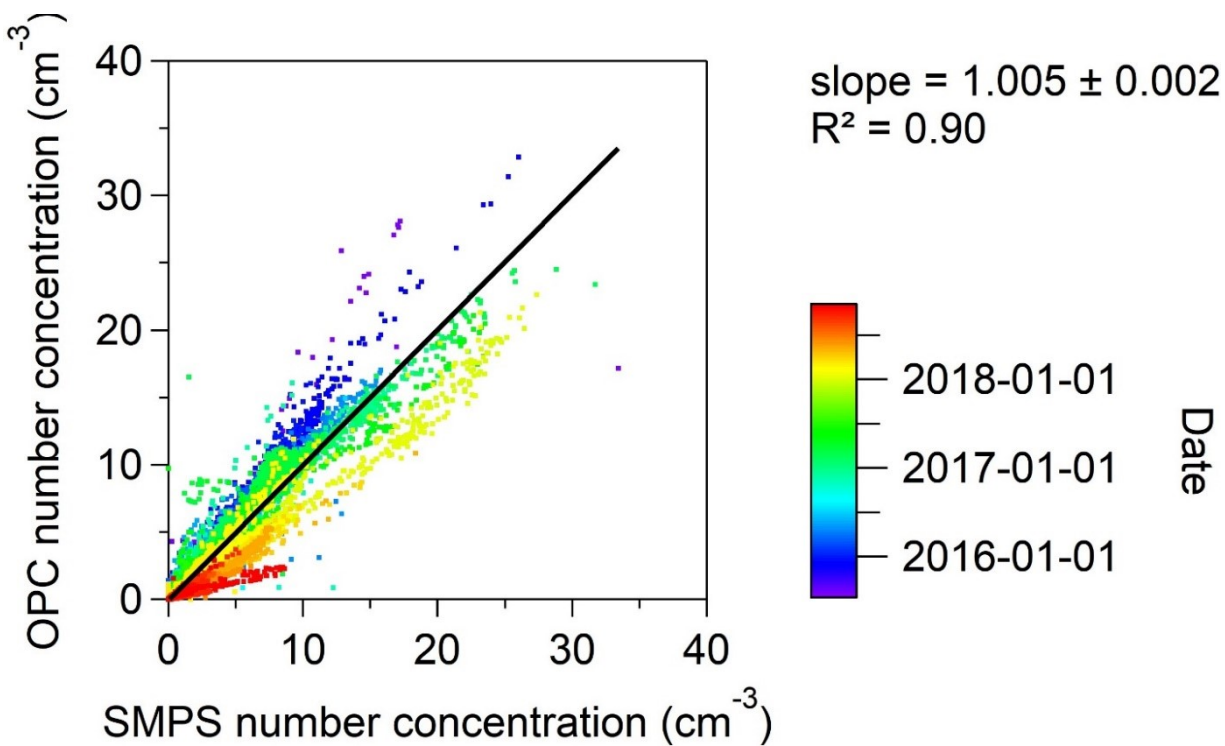


Figure 2-17 Correlation between OPC and SMPS number concentration in the approximate size range of 300 - 500 nm.

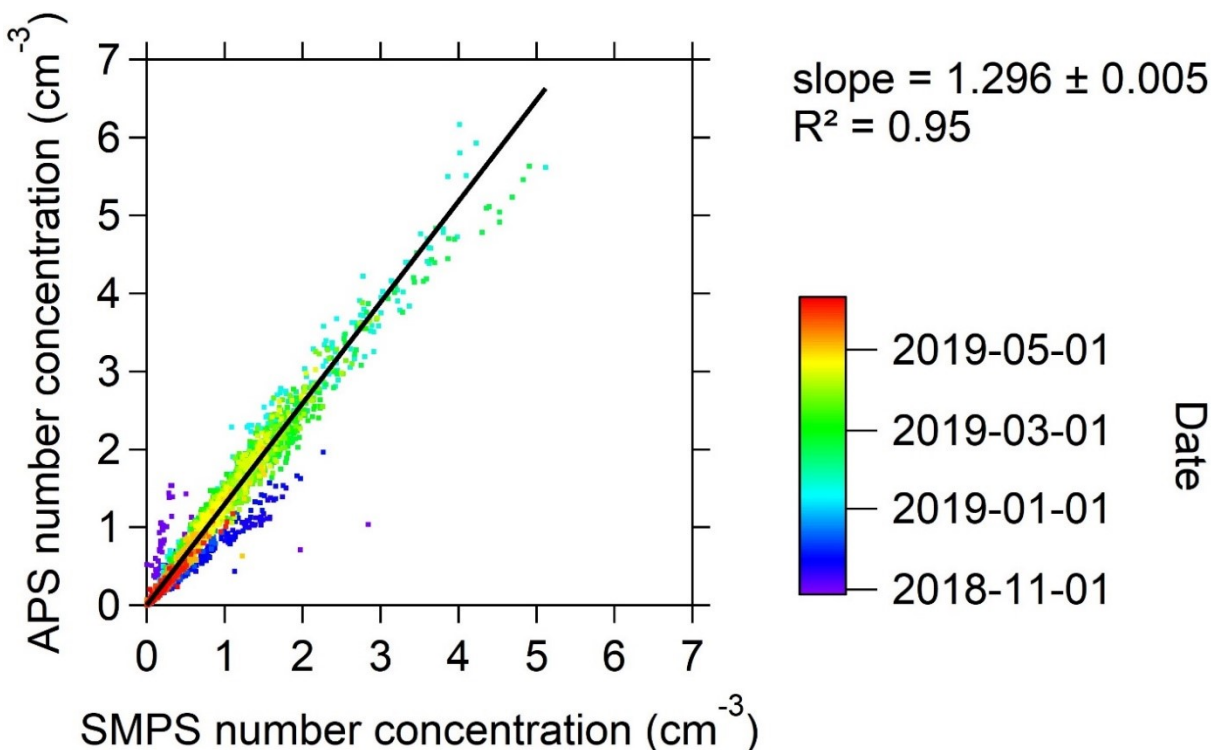


Figure 2-18 Correlation between APS and SMPS number concentration in the approximate size range of 400 - 500 nm.

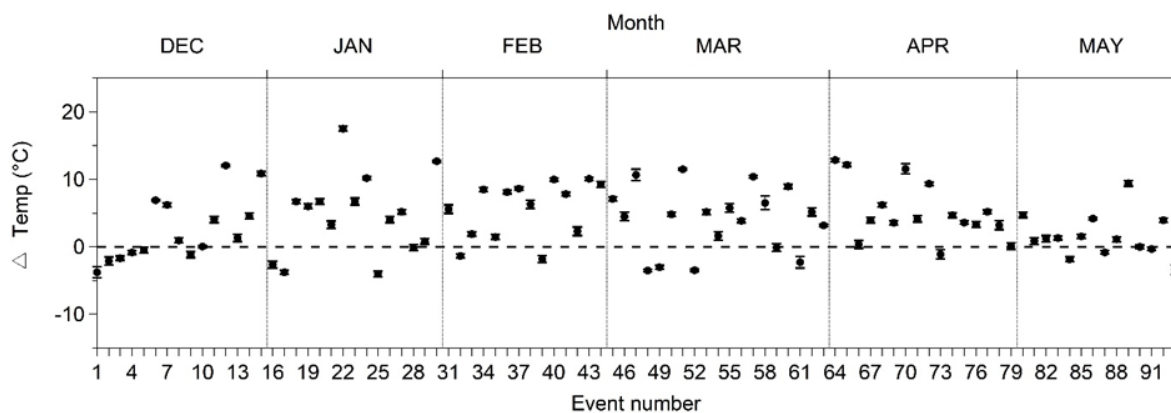


Figure 2-19 Averaged temperature gradient ( $^{\circ}\text{C}$ ) between the PEARL Ridge Lab and Eureka Weather Station (i.e.  $\Delta T = T(\text{Ridge Lab}) - T(\text{Eureka})$ ) for different Arctic haze events during each month for 2016-2019. Error bars express the standard error of the mean.

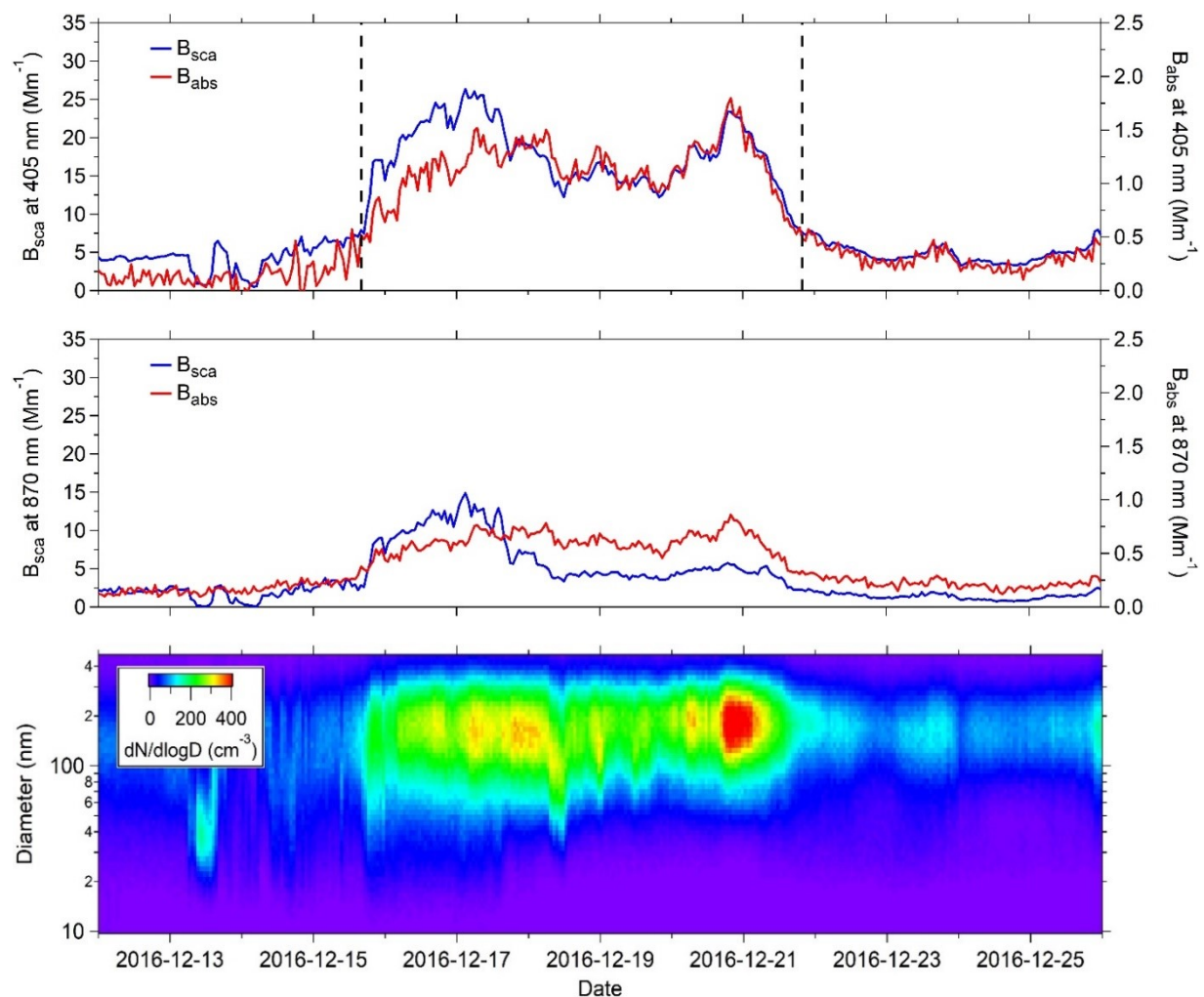


Figure 2-20 Example of Arctic haze event observed in December 2016 at the PEARL Ridge Lab. Hourly averaged scattering (blue line) and absorption (red line) coefficients at wavelengths of 405 (top) and 870 nm (middle), as well as the aerosol size distribution (bottom) from the SMPS instrument for the event. Dashed black lines indicate when the event starts and ends.

Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

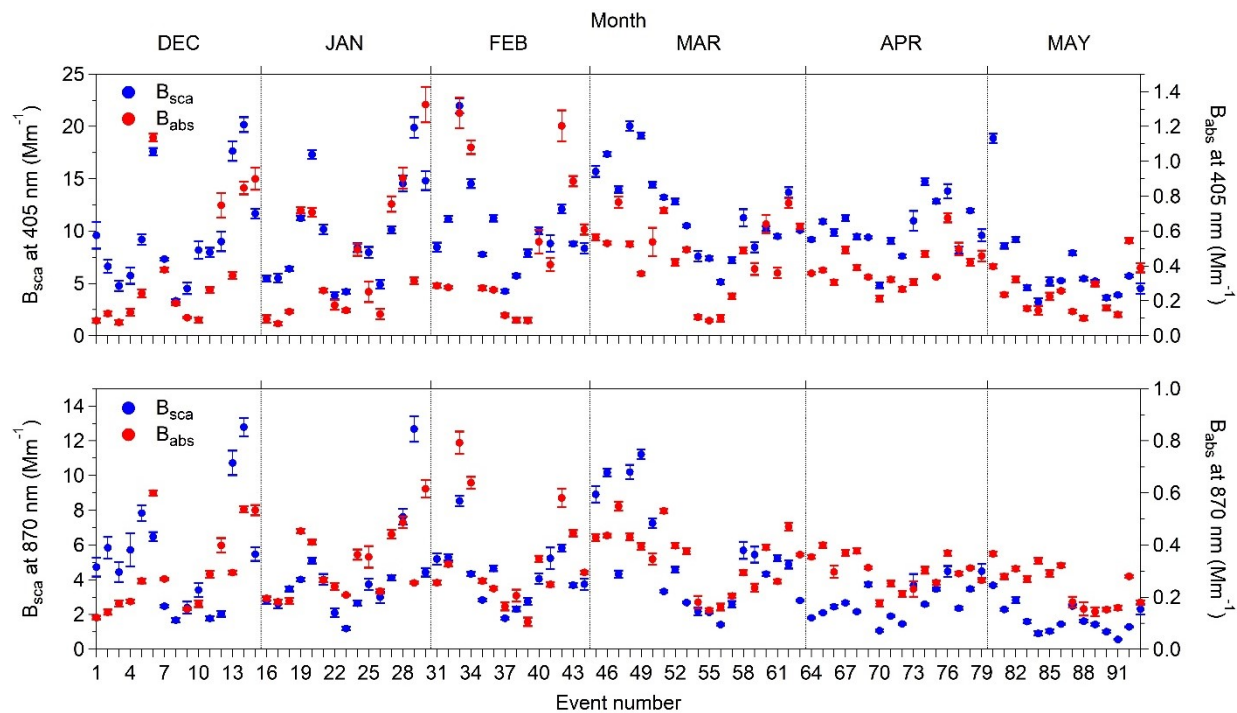


Figure 2-21 Average hourly scattering (blue circle) and absorption (red circle) coefficients at wavelengths of 405 (top) and 870 nm (bottom) calculated for different Arctic haze events for 2016-2019. Error bars express the standard error of the mean.

## 2.8. References (Chapitre 2)

1. AMAP, *AMAP Assessment 2015: Black carbon and ozone as Arctic climate forcers. Arctic Monitoring and Assessment Programme (AMAP)*. Oslo, Norway, 2015.
2. IPCC, *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press: Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 2013; p 1535.
3. Hinzman, L. D.; Deal, C. J.; Polyakov, I. V.; Walsh, J. E.; McGuire, A. D.; Mernild, S. H., Trajectory of the Arctic as an integrated system. *Ecol Appl* **2013**, *23* (8), 1837-68.
4. Woelders, L.; Lenaerts, J. T. M.; Hagemans, K.; Akkerman, K.; van Hoof, T. B.; Hoek, W. Z., Recent climate warming drives ecological change in a remote high-Arctic lake. *Sci Rep*. **2018**, *8* (1), 1-8.
5. Aliabadi, A. A.; Staebler, R. M.; Sharma, S., Air quality monitoring in communities of the Canadian Arctic during the high shipping season with a focus on local and marine pollution. *Atmos. Chem. Phys.* **2015**, *15* (5), 2651-2673.
6. Law, K. S.; Stohl, A., Arctic Air Pollution: Origins and Impacts. *Science (Washington, DC, U. S.)* **2007**, *315* (5818), 1537-1540.
7. Quinn, P. K.; Bates, T. S.; Baum, E.; Doubleday, N.; Fiore, A. M.; Flanner, M.; Fridlind, A.; Garrett, T. J.; Koch, D.; Menon, S.; Shindell, D.; Stohl, A.; Warren, S. G., Short-lived pollutants in the Arctic: their climate impact and possible mitigation strategies. *Atmos. Chem. Phys.* **2008**, *8* (6), 1723-1735.
8. Arnold, S. R.; Law, K. S.; Brock, C. A.; Thomas, J. L.; Starkweather, S. M.; von Salzen, K.; Stohl, A.; Sharma, S.; Lund, M. T.; Flanner, M. G.; Petaja, T.; Tanimoto, H.; Gamble, J.; Dibb, J. E.; Melamed, M.; Johnson, N.; Fidel, M.; Tynkkynen, V. P.; Baklanov, A.; Eckhardt, S.; Monks, S. A.; Browse, J.; Bozem, H., Arctic air pollution: Challenges and opportunities for the next decade. *Elementa-Sci. Anthropol.* **2016**, *4*, 1-17.
9. Marelle, L.; Raut, J.-C.; Law, K. S.; Duclaux, O., Current and Future Arctic Aerosols and Ozone From Remote Emissions and Emerging Local Sources—Modeled Source Contributions and Radiative Effects. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2018**, *123* (22), 12,942-12,963.
10. Stjern, C. W.; Lund, M. T.; Samset, B. H.; Myhre, G.; Forster, P. M.; Andrews, T.; Boucher, O.; Faluvegi, G.; Fläschner, D.; Iversen, T.; Kasoar, M.; Kharin, V.; Kirkevåg, A.; Lamarque, J.-F.; Olivié, D.; Richardson, T.; Sand, M.; Shawki, D.; Shindell, D.; Smith, C. J.;

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

- Takemura, T.; Voulgarakis, A., Arctic Amplification Response to Individual Climate Drivers. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2019**, *124* (13), 6698-6717.
11. Acosta Navarro, J. C.; Varma, V.; Riipinen, I.; Seland, O.; Kirkevaag, A.; Struthers, H.; Iversen, T.; Hansson, H. C.; Ekman, A. M. L., Amplification of Arctic warming by past air pollution reductions in Europe. *Nat. Geosci.* **2016**, *9* (4), 277-281.
12. Najafi, M. R.; Zwiers, F. W.; Gillett, N. P., Attribution of Arctic temperature change to greenhouse-gas and aerosol influences. *Nat. Clim. Change* **2015**, *5* (3), 246-249.
13. Breider, T. J.; Mickley, L. J.; Jacob, D. J.; Ge, C.; Wang, J.; Payer Sulprizio, M.; Croft, B.; Ridley, D. A.; McConnell, J. R.; Sharma, S.; Husain, L.; Dutkiewicz, V. A.; Eleftheriadis, K.; Skov, H.; Hopke, P. K., Multidecadal trends in aerosol radiative forcing over the Arctic: Contribution of changes in anthropogenic aerosol to Arctic warming since 1980. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2017**, *122* (6), 3573-3594.
14. Shindell, D.; Faluvegi, G., Climate response to regional radiative forcing during the twentieth century. *Nat. Geosci.* **2009**, *2* (4), 294-300.
15. Boucher, O.; Randall, D.; Artaxo, P.; Bretherton, C.; Feingold, G.; Forster, P.; Kerminen, V.-M.; Kondo, Y.; Liao, H.; Lohmann, U.; Rasch, P.; Satheesh, S. K.; Sherwood, S.; Stevens, B.; Zhang, X. Y., Clouds and Aerosols. In *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, Stocker, T. F.; Qin, D.; Plattner, G.-K.; Tignor, M.; Allen, S. K.; Boschung, J.; Nauels, A.; Xia, Y.; Bex, V.; Midgley, P. M., Eds. Cambridge University Press: Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 2013; pp 571–658.
16. Flanner, M. G., Arctic climate sensitivity to local black carbon. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2013**, *118* (4), 1840-1851.
17. 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. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2013**, *118* (11), 5380-5552.
18. Clarke, A. D.; Noone, K. J., Soot in the Arctic snowpack: a cause for perturbations in radiative transfer. *Atmos. Environ.* **1985**, *19* (12), 2045-2053.
19. Twomey, S., The Influence of Pollution on the Shortwave Albedo of Clouds. *J. Atmos. Sci.* **1977**, *34* (7), 1149-1152.



**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic  
Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

20. Albrecht, B. A., Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness. *Science* **1989**, 245 (4923), 1227-30.
21. Filioglou, M.; Mielonen, T.; Balis, D.; Giannakaki, E.; Arola, A.; Kokkola, H.; Komppula, M.; Romakkaniemi, S., Aerosol Effect on the Cloud Phase of Low-Level Clouds Over the Arctic. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2019**, 124 (14), 7886-7899.
22. Garrett, T. J.; Zhao, C., Increased Arctic cloud longwave emissivity associated with pollution from mid-latitudes. *Nature* **2006**, 440 (7085), 787-9.
23. Alterskjær, K.; Kristjánsson, J. E.; Hoose, C., Do anthropogenic aerosols enhance or suppress the surface cloud forcing in the Arctic? *J. Geophys. Res.* **2010**, 115 (D22).
24. Mauritsen, T.; Sedlar, J.; Tjernström, M.; Leck, C.; Martin, M.; Shupe, M.; Sjogren, S.; Sierau, B.; Persson, P. O. G.; Brooks, I. M.; Swietlicki, E., An Arctic CCN-limited cloud-aerosol regime. *Atmos. Chem. Phys.* **2011**, 11 (1), 165-173.
25. Freud, E.; Krejci, R.; Tunved, P.; Leaitch, R.; Nguyen, Q. T.; Massling, A.; Skov, H.; Barrie, L., Pan-Arctic aerosol number size distributions: seasonality and transport patterns. *Atmos. Chem. Phys.* **2017**, 17 (13), 8101-8128.
26. Willis, M. D.; Bozem, H.; Kunkel, D.; Lee, A. K. Y.; Schulz, H.; Burkart, J.; Aliabadi, A. A.; Herber, A. B.; Leaitch, W. R.; Abbatt, J. P. D., Aircraft-based measurements of High Arctic springtime aerosol show evidence for vertically varying sources, transport and composition. *Atmos. Chem. Phys.* **2019**, 19 (1), 57-76.
27. Doescher, R.; Vihma, T.; Maksimovich, E., Recent advances in understanding the Arctic climate system state and change from a sea ice perspective: a review. *Atmos. Chem. Phys.* **2014**, 14 (24), 13571-13600, 30 pp.
28. Zhao, C.; Garrett, T. J., Effects of Arctic haze on surface cloud radiative forcing. *Geophys. Res. Lett.* **2015**, 42 (2), 557-564.
29. 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. *Atmos. Chem. Phys.* **2016**, 16 (6), 3665-3682.
30. Schmeisser, L.; Backman, J.; Ogren, J. A.; Andrews, E.; Asmi, E.; Starkweather, S.; Uttal, T.; Fiebig, M.; Sharma, S.; Eleftheriadis, K.; Vratolis, S.; Bergin, M.; Tunved, P.; Jefferson, A., Seasonality of aerosol optical properties in the arctic. *Atmos. Chem. Phys.* **2018**, 18 (16), 11599-11622.

**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic  
Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

31. Shindell, D. T.; Chin, M.; Dentener, F.; Doherty, R. M.; Faluvegi, G.; Fiore, A. M.; Hess, P.; Koch, D. M.; MacKenzie, I. A.; Sanderson, M. G.; Schultz, M. G.; Schulz, M.; Stevenson, D. S.; Teich, H.; Textor, C.; Wild, O.; Bergmann, D. J.; Bey, I.; Bian, H.; Cuvelier, C.; Duncan, B. N.; Folberth, G.; Horowitz, L. W.; Jonson, J.; Kaminski, J. W.; Marmor, E.; Park, R.; Pringle, K. J.; Schroeder, S.; Szopa, S.; Takemura, T.; Zeng, G.; Keating, T. J.; Zuber, A., A multi-model assessment of pollution transport to the Arctic. *Atmos. Chem. Phys.* **2008**, *8* (17), 5353-5372.
32. Schwarz, J. P.; Spackman, J. R.; Gao, R. S.; Watts, L. A.; Stier, P.; Schulz, M.; Davis, S. M.; Wofsy, S. C.; Fahey, D. W., Global-scale black carbon profiles observed in the remote atmosphere and compared to models. *Geophys. Res. Lett.* **2010**, *37* (18).
33. Stohl, A.; Klimont, Z.; Eckhardt, S.; Kupiainen, K.; Shevchenko, V. P.; Kopeikin, V. M.; Novigatsky, A. N., Black carbon in the Arctic: the underestimated role of gas flaring and residential combustion emissions. *Atmos. Chem. Phys.* **2013**, *13* (17), 8833-8855, 23 pp.
34. Eckhardt, S.; Quennehen, B.; Olivie, D. J. L.; Berntsen, T. K.; Cherian, R.; Christensen, J. H.; Collins, W.; Crepinsek, S.; Daskalakis, N.; Flanner, M.; Herber, A.; Heyes, C.; Hodnebrog, O.; Huang, L.; Kanakidou, M.; Klimont, Z.; Langner, J.; Law, K. S.; Lund, M. T.; Mahmood, R.; Massling, A.; Myriokefalitakis, S.; Nielsen, I. E.; Noejgaard, J. K.; Quaas, J.; Quinn, P. K.; Raut, J. C.; Rumbold, S. T.; Schulz, M.; Sharma, S.; Skeie, R. B.; Skov, H.; Uttal, T.; von Salzen, K.; Stohl, A., Current model capabilities for simulating black carbon and sulfate concentrations in the Arctic atmosphere: a multi-model evaluation using a comprehensive measurement data set. *Atmos. Chem. Phys.* **2015**, *15* (16), 9413-9433.
35. Schacht, J.; Heinold, B.; Quaas, J.; Backman, J.; Cherian, R.; Ehrlich, A.; Herber, A.; Huang, W. T. K.; Kondo, Y.; Massling, A.; Sinha, P. R.; Weinzierl, B.; Zanatta, M.; Tegen, I., The importance of the representation of air pollution emissions for the modeled distribution and radiative effects of black carbon in the Arctic. *Atmos. Chem. Phys.* **2019**, *19* (17), 11159-11183.
36. Sand, M.; Samset, B. H.; Balkanski, Y.; Bauer, S.; Bellouin, N.; Berntsen, T. K.; Bian, H.; Chin, M.; Diehl, T.; Easter, R.; Ghan, S. J.; Iversen, T.; Kirkevåg, A.; Lamarque, J.-F.; Lin, G.; Liu, X.; Luo, G.; Myhre, G.; van Oije, T.; Penner, J. E.; Schulz, M.; Seland, O.; Skeie, R. B.; Stier, P.; Takemura, T.; Tsigaridis, K.; Yu, F.; Zhang, K.; Zhang, H., Aerosols at the poles: an AeroCom Phase II multi-model evaluation. *Atmos. Chem. Phys.* **2017**, *17* (19), 12197-12218.
37. Tunved, P.; Stroem, 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-Aalesund, Svalbard. *Atmos. Chem. Phys.* **2013**, *13* (7), 3643-3660, 18 pp.

**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic  
Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

38. Klonecki, A.; Hess, P.; Emmons, L.; Smith, L.; Orlando, J.; Blake, D., Seasonal changes in the transport of pollutants into the Arctic troposphere-model study. *J. Geophys. Res., [Atmos.]* **2003**, *108* (D4), TOP 15/1-TOP 15/21.
39. Barrie, L. A., Arctic air pollution: an overview of current knowledge. *Atmos. Environ.* **1986**, *20* (4), 643-63.
40. Stohl, A., Characteristics of atmospheric transport into the Arctic troposphere. *J. Geophys. Res. Atm.* **2006**, *111* (D11).
41. Shaw, G. E., The Arctic Haze Phenomenon. *B. Am. Meteorol. Soc.* **1995**, *76* (12), 2403-2414.
42. Lange, R.; Dall'Osto, M.; Skov, H.; Noejgaard, J. K.; Nielsen, I. E.; Beddows, D. C. S.; Simo, R.; Harrison, R. M.; Massling, A., Characterization of distinct Arctic aerosol accumulation modes and their sources. *Atmos. Environ.* **2018**, *183*, 1-10.
43. Garrett, T. J.; Zhao, C.; Novelli, P. C., Assessing the relative contributions of transport efficiency and scavenging to seasonal variability in Arctic aerosol. *Tellus, Ser. B* **2010**, *62B* (3), 190-196.
44. Browse, J.; Carslaw, K. S.; Arnold, S. R.; Pringle, K.; Boucher, O., Scavenging processes controlling seasonal cycle in Arctic sulphate and black carbon aerosol. *Atmos. Chem. Phys.* **2012**, *12* (15), 6775-6798.
45. Willis, M. D.; Köllner, F.; Burkart, J.; Bozem, H.; Thomas, J. L.; Schneider, J.; Aliabadi, A. A.; Hoor, P. M.; Schulz, H.; Herber, A. B.; Leaitch, W. R.; Abbatt, J. P. D., Evidence for marine biogenic influence on summertime Arctic aerosol. *Geophys. Res. Lett.* **2017**, *44* (12), 6460-6470.
46. Tremblay, S.; Picard, J.-C.; Bachelder, J. O.; Lutsch, E.; Strong, K.; Fogal, P.; Leaitch, W. R.; Sharma, S.; Kolonjari, F.; Cox, C. J.; Chang, R. Y. W.; Hayes, P. L., Characterization of aerosol growth events over Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016. *Atmos. Chem. Phys.* **2019**, *19* (8), 5589-5604.
47. Greenaway, K. R., *Experiences with Arctic flying weather*. Royal Meteorological Society Canadian Branch: Toronto, Ontario, Canada, 1950; Vol. 1.
48. Mitchell, J. M., Visual range in the polar regions with particular reference to the Alaskan Arctic. *J. Atmos. Terr. Phys.* **1957**, *17*, 195-211.

**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic  
Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

49. Garrett, T. J.; Verzella, L. L., Looking back: An evolving history of Arctic aerosols. *Bull. Amer. Meteor. Soc.* **2008**, *89*.
50. Rahn, K. A.; Borys, R. D.; Shaw, G. E., The Asian source of Arctic haze bands. *Nature (London)* **1977**, *268* (5622), 713-15.
51. Rahn, K. A.; McCaffrey, R. J., On the origin and transport of the winter Arctic aerosol. *Ann. N. Y. Acad. Sci.* **1980**, *338* (Aerosols: Anthropogenic Nat., Sources Transp.), 486-503.
52. Shaw, G. E., Eddy diffusion transport of Arctic pollution from the mid-latitudes: A preliminary model. *Atmospheric Environment (1967)* **1981**, *15* (8), 1483-1490.
53. Schnell, R. C.; Raatz, W. E., Vertical and horizontal characteristics of Arctic haze during AGASP: Alaskan Arctic. *Geophys. Res. Lett.* **1984**, *11* (5), 369-372.
54. Quinn, P. K.; Shaw, G.; Andrews, E.; Dutton, E. G.; Ruoho-Airola, T.; Gong, S. L., Arctic haze: current trends and knowledge gaps. *Tellus, Ser. B* **2007**, *59B* (1), 99-114.
55. Nielsen, I. E.; Skov, H.; Massling, A.; Eriksson, A. C.; Dall'Osto, M.; Junninen, H.; Sarnela, N.; Lange, R.; Collier, S.; Zhang, Q.; Cappa, C. D.; Noejaard, J. K., Biogenic and anthropogenic sources of aerosols at the High Arctic site Villum Research Station. *Atmos. Chem. Phys.* **2019**, *19* (15), 10239-10256.
56. 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, 62.5° W from 2012 to 2014. *Atmos. Chem. Phys.* **2018**, *18* (5), 3269-3287.
57. Shaw, P. M.; Russell, L. M.; Jefferson, A.; Quinn, P. K., Arctic organic aerosol measurements show particles from mixed combustion in spring haze and from frost flowers in winter. *Geophys. Res. Lett.* **2010**, *37* (10), L10803/1-L10803/5.
58. Frossard, A. A.; Shaw, P. M.; Russell, L. M.; Kroll, J. H.; Canagaratna, M. R.; Worsnop, D. R.; Quinn, P. K.; Bates, T. S., Springtime Arctic haze contributions of submicron organic particles from European and Asian combustion sources. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2011**, *116* (D5).
59. 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. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2013**, *118* (2), 943-964.
60. Gong, S. L.; Zhao, T. L.; Sharma, S.; Toom-Sauntry, D.; Lavoue, D.; Zhang, X. B.; Leaitch, W. R.; Barrie, L. A., Identification of trends and interannual variability of sulfate and

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

black carbon in the Canadian High Arctic: 1981-2007. *J. Geophys. Res., [Atmos.]* **2010**, *115* (D7), D07305/1-D07305/9.

61. Ren, L.; Yang, Y.; Wang, H.; Zhang, R.; Wang, P.; Liao, H., Source attribution of Arctic aerosols and associated Arctic warming trend during 1980–2018. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* **2020**, *2020*, 1-45.
62. Sharma, S.; Barrie, L. A.; Magnusson, E.; Brattstroem, G.; Leaitch, W. R.; Steffen, A.; Landsberger, S., A Factor and Trends Analysis of Multidecadal Lower Tropospheric Observations of Arctic Aerosol Composition, Black Carbon, Ozone, and Mercury at Alert, Canada. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2019**, *124* (24), 14133-14161.
63. Stern, D. I., Global sulfur emissions from 1850 to 2000. *Chemosphere* **2005**, *58* (2), 163-75.
64. Hirdman, D.; Sodemann, H.; Eckhardt, S.; Burkhart, J. F.; Jefferson, A.; Mefford, T.; Quinn, P. K.; Sharma, S.; Strom, J.; Stohl, A., Source identification of short-lived air pollutants in the Arctic using statistical analysis of measurement data and particle dispersion model output. *Atmos. Chem. Phys.* **2010**, *10* (2), 669-693.
65. Qi, L.; Li, Q.; Henze, D. K.; Tseng, H.-L.; He, C., Sources of springtime surface black carbon in the Arctic: an adjoint analysis for April 2008. *Atmos. Chem. Phys.* **2017**, *17* (15), 9697-9716.
66. Fisher, J. A.; Jacob, D. J.; Wang, Q.; Bahreini, R.; Carouge, C. C.; Cubison, M. J.; Dibb, J. E.; Diehl, T.; Jimenez, J. L.; Leibensperger, E. M.; Lu, Z.; Meinders, M. B. J.; Pye, H. O. T.; Quinn, P. K.; Sharma, S.; Streets, D. G.; van Donkelaar, A.; Yantosca, R. M., Sources, distribution, and acidity of sulfate-ammonium aerosol in the Arctic in winter-spring. *Atmos. Environ.* **2011**, *45* (39), 7301-7318.
67. Xu, J.-W.; Martin, R. V.; Morrow, A.; Sharma, S.; Huang, L.; Leaitch, W. R.; Burkart, J.; Schulz, H.; Zannata, M.; Willis, M. D.; Henze, D. K.; Lee, C. J.; Herber, A. B.; Abbatt, J. P. D., Source attribution of Arctic black carbon constrained by aircraft and surface measurements. *Atmos. Chem. Phys.* **2017**, *17* (19), 11971-11989.
68. Willis, M. D.; Leaitch, W. R.; Abbatt, J. P. D., Processes Controlling the Composition and Abundance of Arctic Aerosol. *Reviews of Geophysics* **2018**, *56* (4), 621-671.
69. Abbatt, J. P. D.; Leaitch, W. R.; Aliabadi, A. A.; Bertram, A. K.; Blanchet, J.-P.; Boivin-Rioux, A.; Bozem, H.; Burkart, J.; Chang, R. Y. W.; Charette, J.; Chaubey, J. P.; Christensen, R. J.; Cirisan, A.; Collins, D. B.; Croft, B.; Dionne, J.; Evans, G. J.; Fletcher, C. G.; Gali, M.; Ghahremaninezhad, R.; Girard, E.; Gong, W.; Gosselin, M.; Gourdal, M.; Hanna, S. J.; Hayashida, H.; Herber, A. B.; Hesarakhi, S.; Hoor, P.; Huang, L.; Hussherr, R.;

**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic  
Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

Irish, V. E.; Keita, S. A.; Kodros, J. K.; Kollner, F.; Kolonjari, F.; Kunkel, D.; Ladino, L. A.; Law, K.; Lévasséur, M.; Libois, Q.; Liggio, J.; Lizotte, M.; Macdonald, K. M.; Mahmood, R.; Martin, R. V.; Mason, R. H.; Miller, L. A.; Moravek, A.; Mortenson, E.; Mungall, E. L.; Murphy, J. G.; Namazi, M.; Norman, A.-L.; O'Neill, N. T.; Pierce, J. R.; Russell, L. M.; Schneider, J.; Schulz, H.; Sharma, S.; Si, M.; Staebler, R. M.; Steiner, N. S.; Thomas, J. L.; Salzen, K. v.; Wentzell, J. J. B.; Willis, M. D.; Wentworth, G. R.; Xu, J.-W.; Yakobi-Hancock, J. D., Overview paper: new insights into aerosol and climate in the Arctic. *Atmos. Chem. Phys.* **2019**, *19* (4), 2627-2560.

70. Andrews, E.; Ogren, J. A.; Bonasoni, P.; Marinoni, A.; Cuevas, E.; Rodríguez, S.; Sun, J. Y.; Jaffe, D. A.; Fischer, E. V.; Baltensperger, U.; Weingartner, E.; Coen, M. C.; Sharma, S.; Macdonald, A. M.; Leaitch, W. R.; Lin, N. H.; Laj, P.; Arsov, T.; Kalapov, I.; Jefferson, A.; Sheridan, P., Climatology of aerosol radiative properties in the free troposphere. *Atmos. Res.* **2011**, *102* (4), 365-393.

71. Delene, D. J.; Ogren, J. A., Variability of Aerosol Optical Properties at Four North American Surface Monitoring Sites. *J. Atmos. Sci.* **2002**, *59* (6), 1135-1150.

72. Dubovik, O.; Smirnov, A.; Holben, B. N.; King, M. D.; Kaufman, Y. J.; Eck, T. F.; Slutsker, I., Accuracy assessments of aerosol optical properties retrieved from Aerosol Robotic Network (AERONET) Sun and sky radiance measurements. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2000**, *105* (D8), 9791-9806.

73. Kuhn, T.; Damoah, R.; Bacak, A.; Sloan, J. J., Characterizing aerosol transport into the Canadian high Arctic using aerosol mass spectrometry and Lagrangian modelling. *Atmos. Chem. Phys.* **2010**, *10* (21), 10489-10502.

74. Zhao, X.; Strong, K.; Adams, C.; Schofield, R.; Yang, X.; Richter, A.; Friess, U.; Blechschmidt, A. M.; Koo, J. H., A case study of a transported bromine explosion event in the Canadian high arctic. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2016**, *121* (1), 457-477.

75. Bogner, K.; Zhao, X.; Strong, K.; Chang, R. Y.-W.; Frieß, U.; Hayes, P. L.; McClure-Begley, A.; Morris, S.; Tremblay, S.; Vicente-Luis, A., Measurements of tropospheric bromine monoxide over four halogen activation seasons in the Canadian high Arctic. *J. Geophys. Res. Atm.* **2020**, *125* (n/a), e2020JD033015.

76. 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.

77. Leaitch, W. R.; Kodros, J. K.; Willis, M. D.; Hanna, S.; Schulz, H.; Andrews, E.; Bozem, H.; Burkart, J.; Hoor, P.; Kolonjari, F.; Ogren, J. A.; Sharma, S.; Si, M.; von Salzen, K.; Bertram, A. K.; Herber, A.; Abbatt, J. P. D.; Pierce, J. R., Vertical profiles of light

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

absorption and scattering associated with black-carbon particle fractions in the springtime Arctic above 79° N. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* **2019**, 2019, 1-37.

78. Schulz, H.; Zanatta, M.; Bozem, H.; Leaitch, W. R.; Herber, A. B.; Burkart, J.; Willis, M. D.; Kunkel, D.; Hoor, P. M.; Abbatt, J. P. D.; Gerdes, R., High Arctic aircraft measurements characterising black carbon vertical variability in spring and summer. *Atmos. Chem. Phys.* **2019**, 19 (4), 2361-2384.
79. Arnott, W. P.; Moosmüller, H.; Fred Rogers, C.; Jin, T.; Bruch, R., Photoacoustic spectrometer for measuring light absorption by aerosol: instrument description. *Atmos. Environ.* **1999**, 33 (17), 2845-2852.
80. Arnott, W. P.; Walker, J. W.; Moosmuller, H.; Elleman, R. A.; Jonsson, H. H.; Buzorius, G.; Conant, W. C.; Flagan, R. C.; Steinfeld, J. H., Photoacoustic insight for aerosol light absorption aloft from meteorological aircraft and comparison with particle soot absorption photometer measurements: DOE southern great plains climate research facility and the coastal stratocumulus imposed perturbation experiments. *J. Geophys. Res., [Atmos.]* **2006**, 111 (D5), D05S02/1-D05S02/16.
81. Retama, A.; Baumgardner, D.; Raga, G. B.; McMeeking, G. R.; Walker, J. W., Seasonal and diurnal trends in black carbon properties and co-pollutants in Mexico City. *Atmos. Chem. Phys.* **2015**, 15 (16), 9693-9709.
82. Nakayama, T.; Suzuki, H.; Kagamitani, S.; Ikeda, Y.; Uchiyama, A.; Matsumi, Y., Characterization of a Three Wavelength Photoacoustic Soot Spectrometer (PASS-3) and a Photoacoustic Extinctionmeter (PAX). *Journal of the Meteorological Society of Japan. Ser. II* **2015**, 93 (2), 285-308.
83. 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. *Atmos. Meas. Tech.* **2009**, 2 (2), 479-494.
84. Bergstrom, R. W.; Pilewskie, P.; Russell, P. B.; Redemann, J.; Bond, T. C.; Quinn, P. K.; Sierau, B., Spectral absorption properties of atmospheric aerosols. *Atmos. Chem. Phys.* **2007**, 7 (23), 5937-5943.
85. Russell, P. B.; Bergstrom, R. W.; Shinozuka, Y.; Clarke, A. D.; De Carlo, P. F.; Jimenez, J. L.; Livingston, J. M.; Redemann, J.; Dubovik, O.; Strawa, A., Absorption Angstrom Exponent in AERONET and related data as an indicator of aerosol composition. *Atmos. Chem. Phys.* **2010**, 10 (3), 1155-1169.

**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic  
Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

86. 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. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2012**, *117* (June), D11210/1-D11210/10.
87. Bohren, C. F.; Huffman, D. R., *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. John Wiley & Sons Inc.: New York, USA, 1998.
88. Schuster, G. L.; Dubovik, O.; Holben, B. N., Angstrom exponent and bimodal aerosol size distributions. *J. Geophys. Res., [Atmos.]* **2006**, *111* (D7), D07207/1-D07207/14.
89. Moosmuller, H.; Chakrabarty, R. K.; Ehlers, K. M.; Arnott, W. P., Absorption Angstrom coefficient, brown carbon, and aerosols: basic concepts, bulk matter, and spherical particles. *Atmos. Chem. Phys.* **2011**, *11* (3), 1217-1225.
90. Liu, C.; Chung, C. E.; Yin, Y.; Schnaiter, M., The absorption Ångström exponent of black carbon: from numerical aspects. *Atmos. Chem. Phys.* **2018**, *18* (9), 6259-6273.
91. Valenzuela, A.; Olmo, F. J.; Lyamani, H.; Anton, M.; Titos, G.; Cazorla, A.; Alados-Arboledas, L., Aerosol scattering and absorption Angstrom exponents as indicators of dust and dust-free days over Granada (Spain). *Atmos. Res.* **2015**, *154*, 1-13.
92. Schmeisser, L.; Andrews, E.; Ogren, J. A.; Sheridan, P.; Jefferson, A.; Sharma, S.; Kim, J. E.; Sherman, J. P.; Sorribas, M.; Kalapov, I.; Arsov, T.; Angelov, C.; Mayol-Bracero, O. L.; Labuschagne, C.; Kim, S.-W.; Hoffer, A.; Lin, N.-H.; Chia, H.-P.; Bergin, M.; Sun, J.; Liu, P.; Wu, H., Classifying aerosol type using in situ surface spectral aerosol optical properties. *Atmos. Chem. Phys.* **2017**, *17* (19), 12097-12120.
93. Kirchstetter, T. W.; Novakov, T.; Hobbs, P. V., Evidence that the spectral dependence of light absorption by aerosols is affected by organic carbon. *J. Geophys. Res.* **2004**, *109* (D21).
94. Zhang, Y.; Li, Z.; Zhang, Y.; Li, D.; Qie, L.; Che, H.; Xu, H., Estimation of aerosol complex refractive indices for both fine and coarse modes simultaneously based on AERONET remote sensing products. *Atmos. Meas. Tech.* **2017**, *10* (9), 3203-3213.
95. Kodros, J. K.; Hanna, S. J.; Bertram, A. K.; Leaitch, W. R.; Schulz, H.; Herber, A. B.; Zanutta, M.; Burkart, J.; Willis, M. D.; Abbatt, J. P. D.; Pierce, J. R., Size-resolved mixing state of black carbon in the Canadian high Arctic and implications for simulated direct radiative effect. *Atmos. Chem. Phys.* **2018**, *18* (15), 11345-11361.
96. Radney, J. G.; Zangmeister, C. D., Comparing aerosol refractive indices retrieved from full distribution and size- and mass-selected measurements. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **2018**, *220*, 52-66.



## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

97. Sumlin, B. J.; Heinson, W. R.; Chakrabarty, R. K., Retrieving the aerosol complex refractive index using PyMieScatt: A Mie computational package with visualization capabilities. *J. Quant. Spectrosc. Ra.* **2018**, *205*, 127-134.
98. Stohl, A.; Forster, C.; Frank, A.; Seibert, P.; Wotawa, G., Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2. *Atmos. Chem. Phys.* **2005**, *5* (9), 2461-2474.
99. Pandolfi, M.; Alados-Arboledas, L.; Alastuey, A.; Andrade, M.; Angelov, C.; Artiñano, B.; Backman, J.; Baltensperger, U.; Bonasoni, P.; Bukowiecki, N.; Collaud Coen, M.; Conil, S.; Coz, E.; Crenn, V.; Dudoitis, V.; Ealo, M.; Eleftheriadis, K.; Favez, O.; Fetfatzis, P.; Fiebig, M.; Flentje, H.; Ginot, P.; Gysel, M.; Henzing, B.; Hoffer, A.; Holubova Smejkalova, A.; Kalapov, I.; Kalivitis, N.; Kouvarakis, G.; Kristensson, A.; Kulmala, M.; Lihavainen, H.; Lunder, C.; Luoma, K.; Lyamani, H.; Marinoni, A.; Mihalopoulos, N.; Moerman, M.; Nicolas, J.; O'Dowd, C.; Petäjä, T.; Petit, J. E.; Pichon, J. M.; Prokopciuk, N.; Putaud, J. P.; Rodríguez, S.; Sciare, J.; Sellegri, K.; Swietlicki, E.; Titos, G.; Tuch, T.; Tunved, P.; Ulevicius, V.; Vaishya, A.; Vana, M.; Virkkula, A.; Vratolis, S.; Weingartner, E.; Wiedensohler, A.; Laj, P., A European aerosol phenomenology – 6: scattering properties of atmospheric aerosol particles from 28 ACTRIS sites. *Atmos. Chem. Phys.* **2018**, *18* (11), 7877-7911.
100. Aaltonen, V.; Lihavainen, H.; Kerminen, V. M.; Komppula, M.; Hatakka, J.; Eneroth, K.; Kulmala, M.; Viisanen, Y., Measurements of optical properties of atmospheric aerosols in Northern Finland. *Atmos. Chem. Phys.* **2006**, *6* (5), 1155-1164.
101. Collaud Coen, M.; Andrews, E.; Alastuey, A.; Arsov, T. P.; Backman, J.; Brem, B. T.; Bukowiecki, N.; Couret, C.; Eleftheriadis, K.; Flentje, H.; Fiebig, M.; Gysel-Ber, M.; Hand, J. L.; Hoffer, A.; Hooda, R.; Hueglin, C.; Joubert, W.; Keywood, M.; Kim, J. E.; Kim, S. W.; Labuschagne, C.; Lin, N. H.; Lin, Y.; Lund Myhre, C.; Luoma, K.; Lyamani, H.; Marinoni, A.; Mayol-Bracero, O. L.; Mihalopoulos, N.; Pandolfi, M.; Prats, N.; Prenni, A. J.; Putaud, J. P.; Ries, L.; Reisen, F.; Sellegri, K.; Sharma, S.; Sheridan, P.; Sherman, J. P.; Sun, J.; Titos, G.; Torres, E.; Tuch, T.; Weller, R.; Wiedensohler, A.; Zieger, P.; Laj, P., Multidecadal trend analysis of aerosol radiative properties at a global scale. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* **2020**, *2020*, 1-54.
102. Sharma, S.; Andrews, E.; Barrie, L. A.; Ogren, J. A.; Lavoué, D., Variations and sources of the equivalent black carbon in the high Arctic revealed by long-term observations at Alert and Barrow: 1989–2003. *J. Geophys. Res. Atm.* **2006**, *111* (D14).
103. Sharma, S.; Leaitch, W. R.; Huang, L.; Veber, D.; Kolonjari, F.; Zhang, W.; Hanna, S. J.; Bertram, A. K.; Ogren, J. A., An evaluation of three methods for measuring black carbon in Alert, Canada. *Atmos. Chem. Phys.* **2017**, *17* (24), 15225-15243.

**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

104. Croft, B.; Martin, R. V.; Leaitch, W. R.; Burkart, J.; Chang, R. Y. W.; Collins, D. B.; Hayes, P. L.; Hodshire, A. L.; Huang, L.; Kodros, J. K.; Moravek, A.; Mungall, E. L.; Murphy, J. G.; Sharma, S.; Tremblay, S.; Wentworth, G. R.; Willis, M. D.; Abbatt, J. P. D.; Pierce, J. R., Arctic marine secondary organic aerosol contributes significantly to summertime particle size distributions in the Canadian Arctic Archipelago. *Atmos. Chem. Phys.* **2019**, *19* (5), 2787-2812.
105. Schladitz, A.; Mueller, T.; Kaaden, N.; Massling, A.; Kandler, K.; Ebert, M.; Weinbruch, S.; Deutscher, C.; Wiedensohler, A., In situ measurements of optical properties at Tinfou (Morocco) during the Saharan Mineral Dust Experiment SAMUM 2006. *Tellus, Ser. B* **2009**, *61B* (1), 64-78.
106. Alfaro, S. C.; Lafon, S.; Rajot, J. L.; Formenti, P.; Gaudichet, A.; Maille, M., Iron oxides and light absorption by pure desert dust: An experimental study. *J. Geophys. Res., [Atmos.]* **2004**, *109* (D8), D08208/1-D08208/9.
107. Costabile, F.; Barnaba, F.; Angelini, F.; Gobbi, G. P., Identification of key aerosol populations through their size and composition resolved spectral scattering and absorption. *Atmos. Chem. Phys.* **2013**, *13* (5), 2455-2470, 16 pp.
108. Winiger, P.; Barrett, T. E.; Sheesley, R. J.; Huang, L.; Sharma, S.; Barrie, L. A.; Yttri, K. E.; Evangelidou, N.; Eckhardt, S.; Stohl, A.; Klimont, Z.; Heyes, C.; Semiletov, I. P.; Dudarev, O. V.; Charkin, A.; Shakhova, N.; Holmstrand, H.; Andersson, A.; Gustafsson, Ö., Source apportionment of circum-Arctic atmospheric black carbon from isotopes and modeling. *Sci. Adv.* **2019**, *5* (2), eaau8052.
109. Mahmood, R.; von Salzen, K.; Flanner, M.; Sand, M.; Langner, J.; Wang, H.; Huang, L., Seasonality of global and Arctic black carbon processes in the Arctic Monitoring and Assessment Programme models. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2016**, *121* (12), 7100-7116.
110. Schuster, G. L.; Dubovik, O.; Arola, A., Remote sensing of soot carbon - part 1: distinguishing different absorbing aerosol species. *Atmos. Chem. Phys.* **2016**, *16* (3), 1565-1585.
111. 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. *Atmos. Chem. Phys.* **2013**, *13* (18), 9337-9350.
112. Cappa, C. D.; Kolesar, K. R.; Zhang, X.; Atkinson, D. B.; Pekour, M. S.; Zaveri, R. A.; Zelenyuk, A.; Zhang, Q., Understanding the optical properties of ambient sub- and supermicron particulate matter: results from the CARES 2010 field study in northern California. *Atmos. Chem. Phys.* **2016**, *16* (10), 6511-6535.

**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic  
Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

113. Groot, Z. C. D.; Grythe, H.; Stohl, A.; Grythe, H.; Grythe, H.; Skov, H., Substantial contribution of northern high-latitude sources to mineral dust in the Arctic. *J Geophys Res Atmos* **2016**, *121* (22), 13678-13697.
114. Fan, S.-M., Modeling of observed mineral dust aerosols in the arctic and the impact on winter season low-level clouds. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2013**, *118* (19), 11161-11174.
115. Stone, R. S.; Anderson, G. P.; Andrews, E.; Dutton, E. G.; Shettle, E. P.; Berk, A., Incursions and radiative impact of Asian dust in northern Alaska. *Geophys. Res. Lett.* **2007**, *34* (14).
116. Hoffmann, A.; Osterloh, L.; Stone, R.; Lampert, A.; Ritter, C.; Stock, M.; Tunved, P.; Hennig, T.; Boeckmann, C.; Li, S.-M.; Eleftheriadis, K.; Maturilli, M.; Orgis, T.; Herber, A.; Neuber, R.; Dethloff, K., Remote sensing and in-situ measurements of tropospheric aerosol, a PAMARCMiP case study. *Atmos. Environ.* **2012**, *52*, 56-66.
117. Hoffmann, A.; Ritter, C.; Stock, M.; Shiobara, M.; Lampert, A.; Maturilli, M.; Orgis, T.; Neuber, R.; Herber, A., Ground-based lidar measurements from Ny-Alesund during ASTAR 2007. *Atmos. Chem. Phys.* **2009**, *9* (22), 9059-9081.
118. Tomasi, C.; Vitale, V.; Lupi, A.; Di Carmine, C.; Campanelli, M.; Herber, A.; Treffeisen, R.; Stone, R. S.; Andrews, E.; Sharma, S.; Radionov, V.; von Hoyningen-Huene, W.; Stebel, K.; Hansen, G. H.; Myhre, C. L.; Wehrl, C.; Aaltonen, V.; Lihavainen, H.; Virkkula, A.; Hillamo, R.; Stroem, J.; Toledano, C.; Cachorro, V. E.; Ortiz, P.; de Frutos, A. M.; Blindheim, S.; Frioud, M.; Gausa, M.; Zielinski, T.; Petelski, T.; Yamanouchi, T., Aerosols in polar regions: a historical overview based on optical depth and in situ observations. *J. Geophys. Res., [Atmos.]* **2007**, *112* (D16), D16205/1-D16205/28.
119. Bond, T.; Bergstrom, R., Light absorption by carbonaceous particles: an investigative review. *Aerosol Sci. Technol.* **2006**, *40* (1), 27-67.
120. Aldhaif, A. M.; Stahl, C.; Braun, R. A.; Moghaddam, M. A.; Shingler, T.; Crosbie, E.; Sawamura, P.; Dadashazar, H.; Ziemba, L.; Jimenez, J. L.; Campuzano-Jost, P.; Sorooshian, A., Characterization of the Real Part of Dry Aerosol Refractive Index Over North America From the Surface to 12 km. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2018**, *123* (15), 8283-8300.
121. Stegmann, P. G.; Yang, P., A regional, size-dependent, and causal effective medium model for Asian and Saharan mineral dust refractive index spectra. *J. Aerosol Sci.* **2017**, *114*, 327-341.
122. Cotterell, M. I.; Willoughby, R. E.; Bzdek, B. R.; Orr-Ewing, A. J.; Reid, J. P., A complete parameterisation of the relative humidity and wavelength dependence of the

## Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019

refractive index of hygroscopic inorganic aerosol particles. *Atmos. Chem. Phys.* **2017**, *17* (16), 9837-9851.

123. Sokolik, I. N.; Toon, O. B., Incorporation of mineralogical composition into models of the radiative properties of mineral aerosol from UV to IR wavelengths. *J. Geophys. Res., [Atmos.]* **1999**, *104* (D8), 9423-9444.

124. Tomasi, C.; Lupi, A.; Mazzola, M.; Stone, R. S.; Dutton, E. G.; Herber, A.; Radionov, V. F.; Holben, B. N.; Sorokin, M. G.; Sakerin, S. M.; Terpugova, S. A.; Sobolewski, P. S.; Lanconelli, C.; Petkov, B. H.; Busetto, M.; Vitale, V., An update on polar aerosol optical properties using POLAR-AOD and other measurements performed during the International Polar Year. *Atmos. Environ.* **2012**, *52*, 29-47.

125. Sherman, J. P.; Sheridan, P. J.; Ogren, J. A.; Andrews, E.; Hageman, D.; Schmeisser, L.; Jefferson, A.; Sharma, S., A multi-year study of lower tropospheric aerosol variability and systematic relationships from four North American regions. *Atmos. Chem. Phys.* **2015**, *15* (21), 12487-12517.

126. Xu, X.; Zhao, W.; Qian, X.; Wang, S.; Fang, B.; Zhang, Q.; Zhang, W.; Venables, D. S.; Chen, W.; Huang, Y.; Deng, X.; Wu, B.; Lin, X.; Zhao, S.; Tong, Y., The influence of photochemical aging on light absorption of atmospheric black carbon and aerosol single-scattering albedo. *Atmos. Chem. Phys.* **2018**, *18* (23), 16829-16844.

127. Tian, P.; Zhang, L.; Ma, J.; Tang, K.; Xu, L.; Wang, Y.; Cao, X.; Liang, J.; Ji, Y.; Jiang, J. H.; Yung, Y. L.; Zhang, R., Radiative absorption enhancement of dust mixed with anthropogenic pollution over East Asia. *Atmos. Chem. Phys.* **2018**, *18* (11), 7815-7825.

128. Shamjad, P. M.; Tripathi, S. N.; Aggarwal, S. G.; Mishra, S. K.; Joshi, M.; Khan, A.; Sapra, B. K.; Ram, K., Comparison of Experimental and Modeled Absorption Enhancement by Black Carbon (BC) Cored Polydisperse Aerosols under Hygroscopic Conditions. *Environ. Sci. Technol.* **2012**, *46* (15), 8082-8089.

129. Bellouin, N.; Rae, J.; Jones, A.; Johnson, C.; Haywood, J.; Boucher, O., Aerosol forcing in the Climate Model Intercomparison Project (CMIP5) simulations by HadGEM2-ES and the role of ammonium nitrate. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2011**, *116* (Oct.), D20206/1-D20206/25.

130. Popovicheva, O.; Diapouli, E.; Makshtas, A.; Shonija, N.; Manousakas, M.; Saraga, D.; Uttal, T.; Eleftheriadis, K., East Siberian Arctic background and black carbon polluted aerosols at HMO Tiksi. *Sci. Total Environ.* **2019**, *655*, 924-938.

131. Gunsch, M. J.; Kirpes, R. M.; Kolesar, K. R.; Barrett, T. E.; China, S.; Sheesley, R. J.; Laskin, A.; Wiedensohler, A.; Tuch, T.; Pratt, K. A., *Atmos. Chem. Phys.* **2017**, *17*, 10879.

**Chapitre 2 : *In situ* aerosol optical properties at Eureka in the Canadian Arctic  
Archipelago in winter and spring from 2016 to 2019**

132. Huang, J.; Jaegle, L., Wintertime enhancements of sea salt aerosol in polar regions consistent with a sea ice source from blowing snow. *Atmos. Chem. Phys.* **2017**, *17* (5), 3699-3712.
133. May, N. W.; Quinn, P. K.; McNamara, S. M.; Pratt, K. A., Multiyear study of the dependence of sea salt aerosol on wind speed and sea ice conditions in the coastal Arctic. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2016**, *121* (15), 9208-9219.
134. Xu, L.; Russell, L. M.; Burrows, S. M., Potential sea salt aerosol sources from frost flowers in the pan-Arctic region. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2016**, *121* (18), 10,840-10,856.
135. DeCarlo, P. F.; Slowik, J. G.; Worsnop, D. R.; Davidovits, P.; Jimenez, J. L., Particle Morphology and Density Characterization by Combined Mobility and Aerodynamic Diameter Measurements. Part 1: Theory. *Aerosol Sci. Tech.* **2004**, *38* (12), 1185-1205.
136. Staebler, R. M.; den Hartog, G.; Georgi, B.; Duesterdiek, T., Aerosol size distributions in Arctic haze during the Polar Sunrise Experiment 1992. *J. Geophys. Res., [Atmos.]* **1994**, *99* (D12), 25,429-37.

# **Chapitre 3 - Conclusion**

### 3.1. Synthèse

Dans un contexte où le réchauffement continu de l'Arctique et la fonte des glaces s'accroissent, il importe de comprendre au mieux les processus physiques, chimiques et biologiques à l'œuvre derrière ce phénomène de grande ampleur. Nos connaissances actuelles sur l'impact des agents de forçage climatique de courte durée, plus particulièrement les aérosols troposphériques, sur le climat et l'écosystème de l'Arctique demeurent parfois encore très parcellaires. Ceci s'explique en grande partie par le manque de mesures atmosphériques à long terme réalisées dans cette région éloignée et de nombreux défis qui y sont associées. C'est pourquoi accroître nos efforts d'observation des aérosols dans le Haut-Arctique canadien est un axe essentiel de travail. L'étude présentée dans ce manuscrit est le résultat d'un long travail de terrain qui s'est déroulé de juillet 2016 à août 2019 dans un observatoire atmosphérique près d'Eureka, sur l'île d'Ellesmere, dans le territoire du Nunavut. L'objectif de ce projet consistait à déterminer précisément les caractéristiques optiques et microphysiques des aérosols troposphériques qui sont transportés et émis dans la région au fil des saisons. La recherche réalisée dans l'extrême nord est motivée par un besoin d'acquérir une meilleure compréhension des sources, du transport atmosphérique et des processus dynamiques qui influencent les propriétés des aérosols.

Les mesures *in situ* de la distribution en taille et en nombre (0.01 – 10  $\mu\text{m}$ ) des aérosols sont dérivées d'une série d'instruments installés à l'observatoire PEARL, incluant un compteur optique de particules (OPC), un granulomètre de mobilité électrique à balayage (SMPS) et un granulomètre aérodynamique (APS). Les propriétés optiques des aérosols ont été déterminées à l'aide de deux extinciomètres photoacoustiques (PAX) fonctionnant respectivement à des longueurs d'onde de 405 et 870 nm. Les variables analysées comprennent à la fois des propriétés optiques extensives, comme les coefficients de diffusion ( $B_{\text{sca}}$ ) et d'absorption ( $B_{\text{abs}}$ ), ainsi que des propriétés optiques intensives telles que l'albédo de diffusion simple (SSA), les exposants d'Ångström de diffusion (SAE) et d'absorption (AAE) et l'indice de réfraction complexe. Les données recueillies ont été évaluées et corrigées selon des normes de contrôle de qualité bien définies.

Les résultats obtenus à l'observatoire PEARL démontrent une grande variabilité dans la distribution en taille et les propriétés optiques extensives et intensives des aérosols au cours des trois années à l'étude. Pour commencer, il existe un important cycle saisonnier dans les mesures de diffusion et d'absorption aux deux longueurs d'onde avec un minimum en été et en automne et un maximum en hiver et au printemps. L'intensité de la diffusion de la lumière varie considérablement à Eureka, surtout à une courte longueur d'onde, tandis que celle de l'absorption demeure en général très faible. Ce même maximum est caractérisé par une distribution en taille qui est dominée par des particules en mode accumulation (100 – 500 nm) et coïncide avec la formation de la brume sèche arctique. La concentration en nombre des aérosols en mode accumulation atteint également un sommet en avril, ce qui est cohérent avec les concentrations maximales précédemment rapportées dans d'autres sites à l'intérieur de l'Arctique circumpolaire.

Les propriétés optiques intensives des aérosols ont été calculées à partir des mesures de propriétés extensives et de la distribution en taille des aérosols prises à des intervalles de temps bien précis qui correspondent à différents épisodes de brume arctique. Les valeurs de SSA à 405 nm sont généralement élevées et constantes de décembre à mai. Les valeurs de SSA à 870 nm sont, au contraire, légèrement inférieures et plus variables que celles à 405 nm. La diminution du SSA à une longue longueur d'onde s'explique par la faible efficacité de diffusion des plus petites particules (300 - 500 nm). En effet, il a été démontré que la diffusion corrèle fortement avec la concentration en nombre des particules dont le diamètre est supérieur à 300 nm dans le visible (405 nm) et 500 nm dans l'IR (870 nm).

Un nombre élevé d'évènements avec un AAE près de l'unité laisse entendre que le carbone noir est le principal aérosol absorbant dans la région. De plus, SAE varie énormément d'un évènement à un autre, reflétant ainsi différentes sources, voies de transport et mécanismes de déposition des aérosols dans l'Arctique canadien autant durant l'hiver qu'au printemps. Les valeurs les plus élevées sont notées à la fin du printemps et sont associées à l'émergence d'un pic dans le mode Aitken (10 – 100 nm) résultant de la formation et du grossissement de nouvelles particules. Les valeurs les plus basses sont habituellement observées en hiver et correspondent à des aérosols de grande taille comme le sel marin ou la poussière minérale. Des évènements qui comportent un SAE inférieur à 0 ou un SAE près de 0



et un AAE près de 2 ont été identifiés en décembre et témoignent de la présence de poussières minérales au début de la saison froide. Enfin, la partie réelle de l'indice de réfraction demeure stable avec une valeur autour de 1.6 – 1.8, tandis que la partie imaginaire reste faible et bien inférieure à celle du carbone noir pur.

Les relations systématiques entre les paramètres optiques des aérosols mesurés à l'observatoire PEARL dressent un portrait complexe de la composition des aérosols observés et des processus atmosphériques qui ont lieu dans l'archipel arctique canadien. La forte corrélation entre l'absorption à 405 et 870 nm pour l'absorption démontre de nouveau que l'aérosol absorbant dans la brume arctique est dominé par le carbone noir. Lorsque les propriétés intensives sont considérées, les relations systématiques diffèrent souvent en fonction de la longueur d'onde. D'abord, SSA et SAE corrént plus fortement avec la diffusion à 870 nm qu'à 405 nm. Les relations SAE vs.  $B_{sca}$  et SSA vs.  $B_{sca}$  suggèrent notamment que les aérosols de petite taille agissent très peu sur la diffusion à 870 nm, mais continuent tout de même à absorber la radiation à cette longueur d'onde. Ensuite, SSA et  $k$  corrént fortement avec l'absorption à 405 nm et, donc, les périodes où l'absorption est élevée sont caractérisées par des aérosols qui sont davantage enrichis en carbone noir. Les épisodes de brume arctique avec un faible SSA et une absorption élevée proviennent de l'Europe, de la Russie et de l'Alaska. La partie réelle  $n$  ne présente aucune relation particulière avec la diffusion à 405 nm. De plus, les valeurs de SSA les plus élevées à 405 et 870 nm s'accompagnent généralement d'un SAE près de 0. Cela suggère que le sel marin, et peut-être même la poussière minérale, apparaissent sous la forme de grosses particules qui diffusent fortement la lumière aux deux longueurs d'onde.

### 3.2. Perspectives

Le projet effectué à l'observatoire PEARL dans le Haut-Arctique canadien a permis de tracer un portrait clair et utile de la variabilité temporelle et systématique des propriétés optiques et microphysiques des aérosols troposphériques mesurées *in situ* dans la région. Les résultats discutés dans ce manuscrit donnent une vue d'ensemble des propriétés optiques des aérosols, de leur composition et de leur dynamisme dans la troposphère, en plus de fournir une analyse fiable et complète des paramètres optiques pour les modèles climatiques. Le manque

de connaissances sur les propriétés des aérosols et de leur interaction dans l'atmosphère fait en sorte que les modèles éprouvent certaines difficultés à représenter correctement le cycle saisonnier et la distribution des aérosols dans l'Arctique.<sup>1-2</sup> La simulation des aérosols dans les modèles climatiques est cruciale afin de pouvoir établir des prévisions climatiques plus précises pour l'Arctique et ses environs.<sup>3-4</sup> Avec l'accélération de la fonte des glaces, les émissions locales d'aérosols pourraient augmenter considérablement dans les prochaines décennies, surtout celle du carbone noir, en raison d'une possible hausse du transport maritime et de l'extraction des ressources naturelles, comme le pétrole, dans la région polaire.<sup>5-6</sup> Ainsi, les données collectées dans cette étude pourront éventuellement être utilisées pour l'établissement précis d'un inventaire des émissions dans l'Arctique. Les impacts des activités anthropogéniques dans l'Arctique sur le forçage climatique des aérosols dans un avenir rapproché demeure incertaine et sera déterminée en fonction des facteurs environnementaux, sociaux, politiques, et économiques.<sup>7</sup> Les informations acquises sur la concentration et les caractéristiques physiques et chimiques des aérosols pourront également servir à corriger les données satellitaires, à contribuer à la conception de climatologie des aérosols et à évaluer les modèles de transport atmosphérique.<sup>3, 8-9</sup> Coupler les mesures faites sur le terrain avec un modèle comme celui de GEOS-Chem permettrait finalement d'interpréter les variations dans les propriétés optiques des aérosols en hiver et au printemps dans l'archipel arctique canadien.<sup>10-11</sup>

Les conclusions tirées de ce projet soulèvent aussi de nouvelles questions qui pourraient nécessiter des recherches plus approfondies. Tout d'abord, les propriétés optiques et microphysiques des aérosols mesurées en continu près d'Eureka fournissent des informations limitées quant à la variabilité temporelle de la composition chimique et de l'état de mélange des aérosols troposphériques transportés ou émis en Arctique. L'abondance relative du carbone noir et de la poussière minérale ont pu être révélée aisément par des techniques optiques, mais l'importance du sulfate, du sel marin, des espèces organiques et de l'ammonium dans la composition des aérosols dans le Haut-Arctique canadien reste encore incertaine surtout durant la saison froide. La composition chimique des aérosols influence les processus atmosphériques et, par conséquent, détermine l'impact des aérosols sur le climat arctique, d'où son importance dans les modèles climatiques.<sup>12</sup> Il est donc primordial d'établir

une méthode analytique rigoureuse pour élucider la chimie des aérosols mesurés sur le site. L'AMS est une technique en ligne qui a été largement utilisée pour l'analyse quantitative et à haute résolution de la composition chimique des particules d'aérosols atmosphériques au cours de la dernière décennie et tout récemment en Arctique.<sup>13-16</sup>

Cependant, la complexité de son fonctionnement et l'impossibilité d'effectuer des analyses sur une grande échelle de temps sans supervision limitent un peu son utilisation dans l'Arctique. L'achat, le transport et l'installation de cet instrument à l'observatoire PEARL risquent aussi de s'avérer très coûteux.<sup>15-16</sup> Dans ce cas-ci, les techniques hors lignes seront préférables pour déterminer la composition chimique des aérosols sur une longue durée dans un endroit aussi éloigné comme l'Arctique. La méthode consisterait d'abord à collecter les échantillons d'aérosol sur des filtres par intervalle de 7 jours pendant toute l'année à l'aide d'un échantillonneur d'air à grand débit. Après l'échantillonnage, les filtres et le blanc seraient expédiés en laboratoire pour une analyse hors ligne de la composition chimique. Le sulfate ( $\text{SO}_4^{2-}$ ), le nitrate ( $\text{NO}_3^-$ ), l'ammonium ( $\text{NH}_4^+$ ) et les sels marins ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$  et  $\text{K}^+$ ) pourraient être analysés par l'intermédiaire de la chromatographie à échange d'ions et de la microscopie électronique. Bien que l'analyse des aérosols organiques soit légèrement plus complexe, les précurseurs à la formation des aérosols organiques (COV) pourraient facilement être caractérisés en utilisant la chromatographie gazeuse couplée à la spectrométrie de masse (*Gas Chromatography – Mass Spectrometry* ou GC-MS). Ces précurseurs sont abondants lors du lever du soleil polaire au printemps où les propriétés optiques et la distribution en taille des aérosols atteignent leur maximum.<sup>12</sup> Les données recueillies sur la composition chimique seront très utiles pour déterminer comment la chimie influence les propriétés optiques et microphysiques des aérosols au cours de l'année.

Toutefois, les techniques hors lignes sont aussi reconnues pour comporter leur lot de problèmes. Les artefacts potentiels associés aux méthodes hors lignes, tels que l'évaporation et les réactions chimiques qui surviennent sur les filtres, peuvent occasionner des pertes et affecter l'intégrité des échantillons surtout si la période d'échantillonnage est longue. Le manque de soins dans l'application des méthodes d'échantillonnage et l'entreposage et le transport inadéquats des échantillons en laboratoire constituent également des sources importantes de contamination qui peuvent entraîner des biais dans la concentration réelle des

aérosols. Le site se situe d'ailleurs à des centaines de kilomètres du laboratoire destiné à l'analyse des échantillons et n'est pas accessible par avion à longueur d'année. Pour obtenir un échantillon représentatif, des précautions particulières doivent être prises afin de minimiser les risques d'une contamination de l'échantillon et de maintenir l'intégrité de l'échantillon durant le prélèvement, la conservation et le transport. En raison de la durée de la campagne d'échantillonnage, une formation du personnel de la station de recherche doit nécessairement être mise en place pour continuer le prélèvement et la conservation des échantillons lorsque le site demeure inaccessible.

Les techniques analytiques utilisées dans le cadre de cette recherche et celles décrites dans les lignes précédentes sont suffisamment robustes et simples à maintenir, mais elles ne décrivent pas suffisamment le type de mélange des aérosols, dont le carbone noir. La contribution du carbone noir au réchauffement de l'atmosphère par les interactions aérosol-radiation dépend fortement de la concentration, de l'altitude et de l'état de mélange.<sup>17</sup> La notion de mélange (chimique) d'une population d'aérosols fait référence au degré auxquelles les particules de carbone noir sont mélangées avec d'autres espèces d'aérosol. Malgré la dépendance de l'absorption des aérosols sur la morphologie du carbone noir, les mesures sur le type de mélange des aérosols en Arctique sont très limitées.<sup>18</sup> L'installation d'un photomètre monoparticulaire de suie (*Single Particle Soot Photometer* ou SP2) sur le site serait un choix judicieux pour combler ce vide et apprendre davantage sur la relation entre le type de mélange et les propriétés optiques mesurées (p. ex. SSA et AAE) du carbone noir en Arctique. Sur le terrain, le SP2 pourrait être directement connecté au montage avec les deux PAX dans le laboratoire PEARL et pourrait fonctionner toute l'année sous la surveillance du personnel de la station. Le SP2 est un instrument bien connu qui utilise l'incandescence induite par laser et la diffusion de la lumière pour déterminer la masse, la taille et le revêtement du carbone noir dans chaque particule d'aérosols.<sup>19-20</sup>

### 3.3. Références (Chapitre 3)

1. Eckhardt, S.; Quennehen, B.; Olivie, D. J. L.; Berntsen, T. K.; Cherian, R.; Christensen, J. H.; Collins, W.; Crepinsek, S.; Daskalakis, N.; Flanner, M.; Herber, A.; Heyes, C.; Hodnebrog, O.; Huang, L.; Kanakidou, M.; Klimont, Z.; Langner, J.; Law, K. S.; Lund, M. T.; Mahmood, R.; Massling, A.; Myriokefalitakis, S.; Nielsen, I. E.; Noejgaard, J. K.; Quaas, J.; Quinn, P. K.; Raut, J. C.; Rumbold, S. T.; Schulz, M.; Sharma, S.; Skeie, R. B.; Skov, H.; Uttal, T.; von Salzen, K.; Stohl, A., Current model capabilities for simulating black carbon and sulfate concentrations in the Arctic atmosphere: a multi-model evaluation using a comprehensive measurement data set. *Atmos. Chem. Phys.* **2015**, *15* (16), 9413-9433.
  
2. Shindell, D. T.; Chin, M.; Dentener, F.; Doherty, R. M.; Faluvegi, G.; Fiore, A. M.; Hess, P.; Koch, D. M.; MacKenzie, I. A.; Sanderson, M. G.; Schultz, M. G.; Schulz, M.; Stevenson, D. S.; Teich, H.; Textor, C.; Wild, O.; Bergmann, D. J.; Bey, I.; Bian, H.; Cuvelier, C.; Duncan, B. N.; Folberth, G.; Horowitz, L. W.; Jonson, J.; Kaminski, J. W.; Marmer, E.; Park, R.; Pringle, K. J.; Schroeder, S.; Szopa, S.; Takemura, T.; Zeng, G.; Keating, T. J.; Zuber, A., A multi-model assessment of pollution transport to the Arctic. *Atmos. Chem. Phys.* **2008**, *8* (17), 5353-5372.
  
3. Schmeisser, L.; Backman, J.; Ogren, J. A.; Andrews, E.; Asmi, E.; Starkweather, S.; Uttal, T.; Fiebig, M.; Sharma, S.; Eleftheriadis, K.; Vratolis, S.; Bergin, M.; Tunved, P.; Jefferson, A., Seasonality of aerosol optical properties in the arctic. *Atmos. Chem. Phys.* **2018**, *18* (16), 11599-11622.
  
4. Arnold, S. R.; Law, K. S.; Brock, C. A.; Thomas, J. L.; Starkweather, S. M.; von Salzen, K.; Stohl, A.; Sharma, S.; Lund, M. T.; Flanner, M. G.; Petaja, T.; Tanimoto, H.; Gamble, J.; Dibb, J. E.; Melamed, M.; Johnson, N.; Fidel, M.; Tynkkynen, V. P.; Baklanov, A.; Eckhardt, S.; Monks, S. A.; Browse, J.; Bozem, H., Arctic air pollution: Challenges and opportunities for the next decade. *Elementa-Sci. Anthropol.* **2016**, *4*, 1-17.
  
5. Marelle, L.; Raut, J.-C.; Law, K. S.; Duclaux, O., Current and Future Arctic Aerosols and Ozone From Remote Emissions and Emerging Local Sources—Modeled Source Contributions and Radiative Effects. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2018**, *123* (22), 12,942-12,963.
  
6. Corbett, J. J.; Lack, D. A.; Winebrake, J. J.; Harder, S.; Silberman, J. A.; Gold, M., Arctic shipping emissions inventories and future scenarios. *Atmos. Chem. Phys.* **2010**, *10* (19), 9689-9704.
  
7. Peters, G. P.; Nilssen, T. B.; Lindholt, L.; Eide, M. S.; Glomsroed, S.; Eide, L. I.; Fuglestad, J. S., Future emissions from shipping and petroleum activities in the Arctic. *Atmos. Chem. Phys.* **2011**, *11* (11), 5305-5320.

8. Delene, D. J.; Ogren, J. A., Variability of Aerosol Optical Properties at Four North American Surface Monitoring Sites. *J. Atmos. Sci.* **2002**, *59* (6), 1135-1150.
9. Russell, P. B.; Kacenelenbogen, M.; Livingston, J. M.; Hasekamp, O. P.; Burton, S. P.; Schuster, G. L.; Johnson, M. S.; Knobelspiesse, K. D.; Redemann, J.; Ramachandran, S.; Holben, B., A multiparameter aerosol classification method and its application to retrievals from spaceborne polarimetry. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2014**, *119* (16), 9838-9863.
10. Croft, B.; Martin, R. V.; Leaitch, W. R.; Burkart, J.; Chang, R. Y. W.; Collins, D. B.; Hayes, P. L.; Hodshire, A. L.; Huang, L.; Kodros, J. K.; Moravek, A.; Mungall, E. L.; Murphy, J. G.; Sharma, S.; Tremblay, S.; Wentworth, G. R.; Willis, M. D.; Abbatt, J. P. D.; Pierce, J. R., Arctic marine secondary organic aerosol contributes significantly to summertime particle size distributions in the Canadian Arctic Archipelago. *Atmos. Chem. Phys.* **2019**, *19* (5), 2787-2812.
11. Breider, T. J.; Mickley, L. J.; Jacob, D. J.; Wang, Q.; Fisher, J. A.; Chang, R. Y. W.; Alexander, B., Annual distributions and sources of Arctic aerosol components, aerosol optical depth, and aerosol absorption. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2014**, *119* (7), 4107-4124.
12. Willis, M. D.; Leaitch, W. R.; Abbatt, J. P. D., Processes Controlling the Composition and Abundance of Arctic Aerosol. *Reviews of Geophysics* **2018**, *56* (4), 621-671.
13. Tremblay, S.; Picard, J.-C.; Bachelder, J. O.; Lutsch, E.; Strong, K.; Fogal, P.; Leaitch, W. R.; Sharma, S.; Kolonjari, F.; Cox, C. J.; Chang, R. Y. W.; Hayes, P. L., Characterization of aerosol growth events over Ellesmere Island during the summers of 2015 and 2016. *Atmos. Chem. Phys.* **2019**, *19* (8), 5589-5604.
14. Nielsen, I. E.; Skov, H.; Massling, A.; Eriksson, A. C.; Dall'Osto, M.; Junninen, H.; Sarnela, N.; Lange, R.; Collier, S.; Zhang, Q.; Cappa, C. D.; Noejgaard, J. K., Biogenic and anthropogenic sources of aerosols at the High Arctic site Villum Research Station. *Atmos. Chem. Phys.* **2019**, *19* (15), 10239-10256.
15. Laskin, J.; Laskin, A.; Nizkorodov, S. A., Mass Spectrometry Analysis in Atmospheric Chemistry. *Anal. Chem.* **2017**.
16. Pratt, K. A.; Prather, K. A., Mass spectrometry of atmospheric aerosols—Recent developments and applications. Part II: On-line mass spectrometry techniques. *Mass Spectrom. Rev.* **2012**, *31* (1), 17-48.
17. 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. *J. Geophys. Res.: Atmos.* **2013**, *118* (11), 5380-5552.

18. Kodros, J. K.; Hanna, S. J.; Bertram, A. K.; Leitch, W. R.; Schulz, H.; Herber, A. B.; Zanatta, M.; Burkart, J.; Willis, M. D.; Abbatt, J. P. D.; Pierce, J. R., Size-resolved mixing state of black carbon in the Canadian high Arctic and implications for simulated direct radiative effect. *Atmos. Chem. Phys.* **2018**, *18* (15), 11345-11361.

19. Stephens, M.; Turner, N.; Sandberg, J., Particle identification by laser-induced incandescence in a solid-state laser cavity. *Appl. Opt.* **2003**, *42* (19), 3726-3736.

20. Laborde, M.; Mertes, P.; Zieger, P.; Dommen, J.; Baltensperger, U.; Gysel, M., Sensitivity of the single particle soot photometer to different black carbons types. *Atmos. Meas. Tech.* **2012**, *5* (5), 1031-1043.

# **Annexe**



## **I. Traitement des données de l'APS**

Le téléchargement et le traitement des données brutes du granulomètre aérodynamique (APS) ont été réalisés à l'aide du logiciel scientifique d'analyse de données IGOR Pro v6.3.7.2 (WaveMetrics Inc., Portland, OR, USA). Le traitement des données de l'APS s'est effectué en trois étapes : combinaison des données de chaque fichier de données, application d'un contrôle de qualité sur l'ensemble des données et enfin interpolation des données corrigées. Le contrôle de qualité est nécessaire afin de garantir que les données utilisées sont représentatives des aérosols typiquement observés dans le Haut-Arctique canadien. L'interpolation des données permet la comparaison des données de l'APS avec celles des autres instruments utilisés au cours de la recherche. Le lecteur est invité à consulter le mémoire de madame Samantha Tremblay intitulé *Caractérisation des propriétés chimiques, physiques et optiques des matières particulaires atmosphériques dans le Grand Nord canadien* pour de plus amples informations sur le traitement des données du granulomètre de mobilité électrique à balayage (SMPS), du compteur optique de particules (OPC) et des extinctiomètres photoacoustiques (PAX). Seule la description détaillée du protocole de traitement des données de l'APS est donnée ci-dessous. De plus, seules les fonctions développées par l'auteur lui-même sont présentées.

1. Ouvrir les procédures *Global\_Utils04-13.ipf* et *APS\_RC2.ipf* dans une nouvelle expérience Igor Pro.
2. Aller sur *Load and Process APS data* dans l'onglet TSI pour sélectionner et télécharger le dossier avec les fichiers de données de l'APS
3. Une fois les données téléchargées, un message d'erreur apparaîtra à l'écran. L'erreur survient dans l'exécution de la procédure *APS\_RC2.ipf* et s'explique par une incompatibilité du format des fichiers de données utilisés. Pour remédier à ce problème, la procédure *APS\_PEARL.ipf* a été créée.
4. Ouvrir la procédure *APS\_PEARL.ipf* dans l'expérience avant d'exécuter les fonctions suivantes :

```

Function ListOfDateTime () // Combine all APS datetime waves into a single APS datetime wave
// Make the imaginary part of the APS datetime

String datetime_list = ""
Variable i=0

Do
  WAVE/Z w=WaveRefIndexedDFR(:,i) // Get next wave.

  If (WaveExists(w) == 0)
    Break // No more waves.
  Endif

  If (stringmatch(nameofwave(w),"dt_*") && stringmatch(nameofwave(w),"!*im"))
    // Found wave. Add to list with separator.
    datetime_list += nameofwave(w) + ";"
  Endif
  i += 1

While(1) // Loop till break above.

Print datetime_list
Concatenate/NP=0/O datetime_list, APS_datetime

Duplicate/o APS_datetime, APS_datetime_im
InsertPoints 0,1, APS_datetime_im
APS_datetime_im[0] = APS_datetime_im[1]-(APS_datetime_im[2]-APS_datetime_im[1])

End

Function ConcatenateNmatrix () // Combine APS concentration (dN) matrices into a single dN matrix
// Remove side scatter data and aerodynamic raw data form the matrix to keep only the aerodynamic data

String Nmatrix_list = ""
Variable i=0

////////////////////////////////////
//Wave sdm_20190208

//Redimension/N=(-1,1157) sdm_20190208 // Data file has a different dimension than the others (unknown reason)
////////////////////////////////////

Do
  WAVE/Z w=WaveRefIndexedDFR(:,i) // Get next wave.

  If (WaveExists(w) == 0)
    Break // No more waves.
  Endif

```

```

    If (stringmatch(nameofwave(w),"sdm_*"))
        // Found matrix. Add to list with separator.
        Nmatrix_list += nameofwave(w) + ","
    Endif
    i += 1

While(1) // Loop till break above.

Concatenate/NP=0/O Nmatrix_list, APS_Nmatrix
DeletePoints/M=1 52,1156, APS_Nmatrix

End

Function RedoDiameter () // Remake the APS diameter and its imaginary part by adding <0.523 um channel in the first row
// Average the first size channel to 0.4115 um

Variable i=0

Do
    WAVE/Z w=WaveRefIndexedDFR(:,i) // Get next wave.

    If (WaveExists(w) == 0)
        Break // No more waves.
    Endif

    If (stringmatch(nameofwave(w),"diameter_*") && stringmatch(nameofwave(w),"!*im"))
        // Found wave.
        Duplicate/o $nameofwave(w), APS_diameter
        Redimension/N=51 APS_diameter
        InsertPoints 0,1, APS_diameter
        APS_diameter[0] = 0.4465

        Duplicate/o APS_diameter, APS_diameter_im
        InsertPoints 0,1, APS_diameter_im
        APS_diameter_im[0] = APS_diameter_im[1]-(APS_diameter_im[2]-APS_diameter_im[1])

    Endif
    i += 1

While(1) // Loop till break above.

End

Function IntegratedN () // Make integrated dN concentration wave

Wave APS_Nmatrix

MatrixOP APS_integrated_N = sumrows(APS_Nmatrix)

End

Function dN2dNlogDp () // Convert dN (number concentration) matrix to dN/dlogDp (normalized number concentration) matrix
// Make APS dlogDp wave

Wave APS_Nmatrix
Wave APS_diameter
Wave APS_diameter_im

Duplicate/o APS_Nmatrix, APS_Nmatrix_dlogDp
Make/o/n=(numpnts(APS_diameter)) APS_dlogDp

Variable i

For (i=0; i<numpnts(APS_diameter); i+=1)
    APS_dlogDp[i] = log(APS_diameter[i]/APS_diameter_im[i])
Endfor

Variable j
Variable k

For (j=0; j<dimsizes(APS_Nmatrix_dlogDp, 0); j+=1)
    For (k=0; k<dimsizes(APS_Nmatrix_dlogDp, 1); k+=1)
        APS_Nmatrix_dlogDp[j][k] = APS_Nmatrix[j][k]/APS_dlogDp[k]
    Endfor
Endfor

End

```

5. Procéder à un contrôle de qualité des données brutes téléchargées en important la *wave Flagwv\_APS* du plus récent document de traitement des données de l'APS dans celui nouvellement créé. Sinon, créer une nouvelle *wave* nommée *Flagwv\_APS* ayant le même nombre de points que les *waves* de temps et de concentration combinées.
6. Remplacer les valeurs de « 0 » par « 2 » de chaque rangée de la *wave Flagwv\_APS* lorsque les données correspondantes sont considérées comme aberrantes. Ajuster avant le même nombre de points de la *wave Flagwv\_APS* pour qu'il soit identique à celui des *waves* créées de temps et de concentration à la suite de l'exécution des fonctions de la procédure *APS\_PEARL.ipf*. Il est important de mentionner que les instruments installés à l'observatoire PEARL collectent continuellement des données. L'entretien des instruments, les vérifications hebdomadaires, les tests expérimentaux et les calibrations génèrent donc des données erronées qui doivent nécessairement être éliminées avant l'analyse et les calculs.
7. Ouvrir la procédure *APS\_QC.ipf* et exécuter une première fois la fonction *APS\_QC\_all ()* pour appliquer le contrôle de qualité sur l'ensemble des données. Les nouvelles *waves* corrigées sont créées de la façon suivante : *MX\_QC\_APS\_Nmatrix*, *MX\_QC\_APS\_integratedN*, et *MX\_QC\_APS\_Nmatrix\_dlogDp*.

Function APS\_QC\_all()

Wave Flagwv\_APS  
 Wave APS\_Nmatrix  
 Wave APS\_integrated\_N  
 Wave APS\_Nmatrix\_dlogDp

APS\_QC1 (APS\_Nmatrix, Flagwv\_APS)  
 APS\_QC2 (APS\_integrated\_N, Flagwv\_APS)  
 APS\_QC3 (APS\_Nmatrix\_dlogDp, Flagwv\_APS)

End

Function APS\_QC1 (APS\_Nmatrix, Flagwv\_APS)

Wave Flagwv\_APS  
 Wave APS\_Nmatrix

Duplicate/o APS\_Nmatrix, MX\_QC\_APS\_Nmatrix

Variable i  
 Variable j  
 i=0  
 j=0

```

For (i=0; i<dimsiz(MX_QC_APS_Nmatrix,0); i+=1)
  If (Flagwv_APS[i] == 2)
    For (j=0; j<dimsiz(MX_QC_APS_Nmatrix,1); j+=1)
      MX_QC_APS_Nmatrix[i][j] = NaN
    Endfor
  Endif
Endfor

End

Function APS_QC2 (APS_integrated_N, Flagwv_APS)

Wave Flagwv_APS
Wave APS_integrated_N

Duplicate/o APS_integrated_N, MX_QC_APS_integrated_N

Variable i
i=0

For (i=0; i<dimsiz(MX_QC_APS_integrated_N,0); i+=1)
  If (Flagwv_APS[i] == 2)
    MX_QC_APS_integrated_N[i][p] = NaN
  Endif
Endfor

End

Function APS_QC3 (APS_Nmatrix_dlogDp, Flagwv_APS)

Wave Flagwv_APS
Wave APS_Nmatrix_dlogDp

Duplicate/o APS_Nmatrix_dlogDp, MX_QC_APS_Nmatrix_dlogDp

Variable i
Variable j
i=0
j=0

For (i=0; i<dimsiz(MX_QC_APS_Nmatrix_dlogDp,0); i+=1)
  If (Flagwv_APS[i] == 2)
    For (j=0; j<dimsiz(MX_QC_APS_Nmatrix_dlogDp,1); j+=1)
      MX_QC_APS_Nmatrix_dlogDp[i][j] = NaN
    Endfor
  Endif
Endfor

End

```

8. Procéder à un second contrôle de qualité en éliminant cette fois-ci les données ayant des valeurs extrêmes à l'aide de la *wave* *Flagwv\_APS* et de la fonction *APS\_QC\_all ()*.
9. Préparer les *waves* corrigées de temps et de concentration de l'APS en vue de l'interpolation de leurs données.

9.1. Taper les lignes suivantes dans la ligne de commande :

```

duplicate/o APS_datetime, APS_datetime_reg
duplicate/o MX_QC_APS_Nmatrix_dlogDp, APS_Nmatrix_dlogDp_reg
duplicate/o MX_QC_APS_integrated_N, APS_integrated_N_reg

```

9.2. Redimensionner les *waves* dupliquées en tenant compte de la dernière date enregistrée dans le plus récent document de traitement des données de l'APS. Ainsi, l'interpolation s'appliquera uniquement sur les nouvelles données téléchargées et non sur l'ensemble des données existantes. À noter que l'interpolation des données est un processus qui est relativement long.

9.3. Une fois importée dans le document Igor Pro, modifier les paramètres de la procédure *APS\_Time\_for\_Regrid.ipf* pour donner les *waves* de temps horaire souhaités. Utiliser les minutes et les secondes affichées dans la première rangée de la *wave APS\_datetime\_reg* dans la procédure.

```
Function APS_Time_for_Regrid (APS_datetime_reg)
Wave APS_datetime_reg

make/o/d/n = (5000) aps_datetime_start
make/o/d/n = (5000) aps_datetime_end

aps_datetime_start = APS_datetime_reg [0] + (x*60*60) - (00*60) - 14
aps_datetime_end = APS_datetime_reg [0] + (x*60*60) + (60*60) - (00*60) - 14

End
```

9.4. Exécuter la fonction *APS\_Time\_for\_Regrid (APS\_datetime\_reg)* dans la ligne de commande et redimensionner au besoin les *waves aps\_datetime\_start* et *aps\_datetime\_end* pour qu'elles n'incluent que les nouvelles données.

10. Effectuer une interpolation des données corrigées de concentration de l'APS afin d'obtenir des données moyennées chaque heure.

10.1. Ouvrir la procédure *Regrid\_wave\_matrix\_progress\_bar\_for\_matrix.ipf* avant d'entrer les fonctions ci-dessous dans la ligne de commande.

```
AvgSMPSImage (aps_datetime_start, aps_datetime_end, APS_Nmatrix_dlogDp_reg,
APS_datetime_reg)
```

```
AMS_2_FTIR (APS_datetime_reg, APS_integrated_N_reg, aps_datetime_start,
aps_datetime_end, 0, 0)
```

10.2. Renommer les nouvelles *waves* de concentration de la manière suivante :

```
smgs_Nmatrix_h → APS_Nmatrix_dogDp_h_reg
```

```
concwave_fil_avg → APS_integrated_N_h_reg
```

11. Importer et jumeler les *waves* de temps et de concentration moyennés en heure du plus récent document de traitement des données de l'APS avec les nouvelles *waves* créées.

## II. Calcul de SSA, SAE et AAE

Cette section présente en détail un certain nombre de fonctions utilisées pour déterminer l'albédo de diffusion simple (SSA) et les exposants d'Ångström de diffusion (SAE) et d'absorption (AAE) pour chaque évènement d'aérosols observé en Arctique de 2016 à 2019. Les calculs de ces propriétés optiques intensives ont été réalisés à l'aide du logiciel Igor Pro. La procédure *PAX\_CorrelationGraphs.ipf* met en relation sous forme de graphique les coefficients de diffusion ( $B_{sca}$ ) et d'absorption ( $B_{abs}$ ) à 405 et 870 nm de chaque évènement. Les relations créées incluent  $B_{sca}$  vs  $B_{abs}$ ,  $B_{sca}$  vs  $B_{sca}$  et  $B_{abs}$  vs  $B_{abs}$ . La procédure *PAX\_SSA+AAE+SAE.ipf* calcule les valeurs de SSA, AAE et SAE à chaque heure pour ensuite déterminer la moyenne, l'écart-type et l'erreur type de ces valeurs. L'opération est répétée pour chaque évènement d'aérosols. *PAX\_Average\_Bsca+Babs.ipf* décrit précisément les fonctions qui permettent de moyenniser  $B_{sca}$  et  $B_{abs}$  pour chaque évènement. La procédure donne également l'écart-type et l'erreur type de  $B_{sca}$  et  $B_{abs}$  pour chaque évènement. *PAX\_QC\_SSA+AAE+SAE.ipf* détermine le coefficient de corrélation ( $R^2$ ) des relations  $B_{sca}$  vs  $B_{abs}$ ,  $B_{sca}$  vs  $B_{sca}$  et  $B_{abs}$  vs  $B_{abs}$  aux deux longueurs d'onde. La procédure *PAX\_SSA+AAE+SAE\_V2.1.ipf* calcule de nouveau les valeurs de SSA, AAE et SAE pour chaque évènement à partir des valeurs moyennes de  $B_{sca}$  et  $B_{abs}$  pour chaque évènement. La procédure *PAX\_Linear\_regression.ipf* donne la pente de la droite de régression linéaire de toutes les relations établies pour chaque évènement d'aérosols. Enfin, la dernière procédure *PAX\_SSA+AAE+SAE\_V3.ipf* calcule encore les valeurs de SSA, AAE, et SAE à partir cette fois-ci des pentes de régression linéaire, et ce, pour chaque évènement.



## *PAX\_CorrelationGraphs.ipf*

```
// Correlation of scattering and absorption coefficients for two wavelengths (i.e. 405 and 870 nm).
// Creation of several graphs for each event

// Make sure all the PAX waves are written as follows:

    // "PAX###_datetime_end_E#"
    // "PAX###_bsca_h_E#"
    // "PAX###_babs_h_E#"
    // where '#' indicate a number (e.g. wavelength or number of events)

// Do not calculate the slope or the correlation coefficient (R2)

Function PAXWaves_AE () // Duplicate PAX waves specifically for the Angström exponents calculation.
                        //The original PAX waves will be used for the single scattering albedo calculation.

Variable i

String wname1 = "PAX405_datetime_end_E"
String wname2 = "PAX405_bsca_h_E"
String wname3 = "PAX405_babs_h_E"
String wname4 = "PAX870_datetime_end_E"
String wname5 = "PAX870_bsca_h_E"
String wname6 = "PAX870_babs_h_E"

String wname1_temp
String wname2_temp
String wname3_temp
String wname4_temp
String wname5_temp
String wname6_temp

For (i=35; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<_)

    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)
    wname4_temp = wname4+num2str(i)
    wname5_temp = wname5+num2str(i)
    wname6_temp = wname6+num2str(i)

Wave fullname = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp
Wave fullname4 = $wname4_temp
Wave fullname5 = $wname5_temp
Wave fullname6 = $wname6_temp

String nwname1 = "PAX405_datetime_end_AE_E"
String nwname2 = "PAX405_bsca_h_AE_E"
String nwname3 = "PAX405_babs_h_AE_E"
String nwname4 = "PAX870_datetime_end_AE_E"
String nwname5 = "PAX870_bsca_h_AE_E"
String nwname6 = "PAX870_babs_h_AE_E"

String nwname1_temp
String nwname2_temp
String nwname3_temp
String nwname4_temp
String nwname5_temp
String nwname6_temp

nwname1_temp = nwname1+num2str(i)
nwname2_temp = nwname2+num2str(i)
nwname3_temp = nwname3+num2str(i)
nwname4_temp = nwname4+num2str(i)
nwname5_temp = nwname5+num2str(i)
nwname6_temp = nwname6+num2str(i)
```

```

Wave fullname = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp
Wave fullname4 = $wname4_temp
Wave fullname5 = $wname5_temp
Wave fullname6 = $wname6_temp

Duplicate/o $wname1_temp, $wname1_temp
Duplicate/o $wname2_temp, $wname2_temp
Duplicate/o $wname3_temp, $wname3_temp
Duplicate/o $wname4_temp, $wname4_temp
Duplicate/o $wname5_temp, $wname5_temp
Duplicate/o $wname6_temp, $wname6_temp

Endfor

End

Function PAX_SSA_AE () // Make all scattering and absorption correlation graphs

PAX405_SSA ()
PAX870_SSA ()
PAX_AAE ()
PAX_SAE ()

End

Function PAX405_SSA () // Correlation between scattering and absorption coefficients (SSA) measured at wavelength of 405 nm

Variable i

String wname1 = "PAX405_datetime_end_E"
String wname2 = "PAX405_bsca_h_E"
String wname3 = "PAX405_babs_h_E"

String wname1_temp
String wname2_temp
String wname3_temp

For (i=35; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__)

wname1_temp = wname1+num2str(i)
wname2_temp = wname2+num2str(i)
wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp
Display fullname2 vs fullname3
ModifyGraph mirror=1, fSize=12, standoff=0; DelayUpdate
//ModifyGraph manTick(left)={0,10,0,0}, manMinor(left)={1,50}; DelayUpdate
//ModifyGraph manTick(bottom)={0,1,0,0}, manMinor(bottom)={1,50}; DelayUpdate
Label left "B\Z14\Bsca\W at 405 nm (Mm\S-1\W)"; DelayUpdate
Label bottom "B\Z14\Babs\W at 405 nm (Mm\S-1\W)"
TextBox/C/N=text0/F=0/B=1/A=RC/E/X=6.84/Y=32.37 "\Z12y intercept = ± \rslope = ± \rR² = \rSSA = ± "
ModifyGraph mode=3, marker=19; DelayUpdate
ModifyGraph zColor($wname2_temp)={$wname1_temp, *, *, Rainbow, 1}
ColorScale/C/N=text1/F=0/B=1/A=RC/X=-4.94/Y=-6.47/E width=10, heightPct=70, trace=$wname2_temp; DelayUpdate
ColorScale/C/N=text1 fsize=12, lblMargin=30; DelayUpdate
ColorScale/C/N=text1 "Time (UTC)"

Endfor

End

```

Function PAX870\_SSA () // Correlation between scattering and absorption coefficients (SSA) measured at wavelength of 870 nm

Variable i

String wname1 = "PAX405\_datetime\_end\_E"  
String wname2 = "PAX870\_bsca\_h\_E"  
String wname3 = "PAX870\_babs\_h\_E"

String wname1\_temp  
String wname2\_temp  
String wname3\_temp

For (i=35; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<\_\_)

wname1\_temp = wname1+num2str(i)  
wname2\_temp = wname2+num2str(i)  
wname3\_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname = \$wname1\_temp  
Wave fullname2 = \$wname2\_temp  
Wave fullname3 = \$wname3\_temp

Display fullname2 vs fullname3  
ModifyGraph mirror=1,fSize=12,standoff=0;DelayUpdate  
//ModifyGraph manTick(left)={0,10,0,0},manMinor(left)={1,50};DelayUpdate  
//ModifyGraph manTick(bottom)={0,1,0,0},manMinor(bottom)={1,50};DelayUpdate  
Label left "B\Z14\Bsca\|M at 870 nm (Mm\S-1\|M)";DelayUpdate  
Label bottom "B\Z14\Babs\|M at 870 nm (Mm\S-1\|M)"  
TextBox/C/N=text0/F=0/B=1/A=RC/E/X=6.84/Y=32.37 "\Z12y intercept = ± \rslope = ± \rR² = \rSSA = ± "  
ModifyGraph mode=3,marker=19;DelayUpdate  
ModifyGraph zColor(\$wname2\_temp)={\$wname1\_temp,\*,\*,Rainbow,1}  
ColorScale/C/N=text1/F=0/B=1/A=RC/X=-4.94/Y=-6.47/E width=10,heightPct=70,trace=\$wname2\_temp;DelayUpdate  
ColorScale/C/N=text1 fsize=12,lblMargin=30;DelayUpdate  
ColorScale/C/N=text1 "Time (UTC)"

Endfor

End

Function PAX\_AAE () // Correlation between absorption coefficients (AAE) measured at wavelength of 405 nm and 870 nm

Variable i

String wname1 = "PAX405\_datetime\_end\_AE\_E"  
String wname2 = "PAX405\_babs\_h\_AE\_E"  
String wname3 = "PAX870\_babs\_h\_AE\_E"

String wname1\_temp  
String wname2\_temp  
String wname3\_temp

For (i=35; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<\_\_)

wname1\_temp = wname1+num2str(i)  
wname2\_temp = wname2+num2str(i)  
wname3\_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname = \$wname1\_temp  
Wave fullname2 = \$wname2\_temp  
Wave fullname3 = \$wname3\_temp

Display fullname2 vs fullname3  
ModifyGraph mirror=1,fSize=12,standoff=0;DelayUpdate  
//ModifyGraph manTick(left)={0,1,0,0},manMinor(left)={1,50};DelayUpdate  
//ModifyGraph manTick(bottom)={0,0.2,0,1},manMinor(bottom)={1,50};DelayUpdate  
Label left "B\Z14\Babs\|M at 405 nm (Mm\S-1\|M)";DelayUpdate  
Label bottom "B\Z14\Babs\|M at 870 nm (Mm\S-1\|M)"  
TextBox/C/N=text0/F=0/B=1/A=RC/E/X=6.84/Y=32.37 "\Z12y intercept = ± \rslope = ± \rR² = \rAAE = ± "  
ModifyGraph mode=3,marker=19;DelayUpdate  
ModifyGraph zColor(\$wname2\_temp)={\$wname1\_temp,\*,\*,Rainbow,1}  
ColorScale/C/N=text1/F=0/B=1/A=RC/X=-4.94/Y=-6.47/E width=10,heightPct=70,trace=\$wname2\_temp;DelayUpdate  
ColorScale/C/N=text1 fsize=12,lblMargin=30;DelayUpdate  
ColorScale/C/N=text1 "Time (UTC)"

```

Endfor

End

Function PAX_SAE () // Correlation between scattering coefficients (SAE) measured at wavelength of 405 nm and 870 nm

Variable i

String wname1 = "PAX405_datetime_end_AE_E"
String wname2 = "PAX405_bsca_h_AE_E"
String wname3 = "PAX870_bsca_h_AE_E"

String wname1_temp
String wname2_temp
String wname3_temp

For (i=35; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__)

    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

    Display fullname2 vs fullname3
    ModifyGraph mirror=1,fSize=12,standoff=0;DelayUpdate
    //ModifyGraph manTick(left)={0,10,0,0},manMinor(left)={1,50};DelayUpdate
    //ModifyGraph manTick(bottom)={0,10,0,0},manMinor(bottom)={1,50};DelayUpdate
    Label left "B\Z14\BscallM at 405 nm (Mm\S-1\lM)";DelayUpdate
    Label bottom "B\Z14\BscallM at 870 nm (Mm\S-1\lM)"
    TextBox/C/N=text0/F=0/B=1/A=RC/E/X=6.84/Y=32.37 "\Z12y intercept = ± \rslope = ± \rR² = \rSAE = ± "
    ModifyGraph mode=3,marker=19;DelayUpdate
    ModifyGraph zColor($wname2_temp)={$wname1_temp,*,*,Rainbow,1}
    ColorScale/C/N=text1/F=0/B=1/A=RC/X=-4.94/Y=-6.47/E width=10,heightPct=70,trace=$wname2_temp;DelayUpdate
    ColorScale/C/N=text1 fsize=12,lblMargin=30;DelayUpdate
    ColorScale/C/N=text1 "Time (UTC)"

EndFor

End

```

## *PAX\_SSA+AAE+SAE.ipf*

```
// Average of the single scattering albedo (SSA) at wavelngths of 405 nm and 870 nm for each Arctic Haze event
// Average of the absorption (AAE) and scattering (SAE) Angström exponents for each Arctic Haze event
// Name all Arctic Haze events
// Compute aerosol optical properties for each Arctic Haze event

// Make sure all the PAX waves are witten as follows

// Single scattering albedo (SSA) calculation:

// "PAX###_datetime_end_E#"
// "PAX###_bsca_h_E#"
// "PAX###_babs_h_E#"
// where '#' indicate a number (e.g. wavelngth or number of events)

// Absorption (AAE) and scattering (SAE) Angström exponents calculation:

// "PAX###_datetime_end_AE_E#"
// "PAX###_bsca_h_AE_E#"
// "PAX###_babs_h_AE_E#"
// where '#' indicate a number (e.g. wavelngth or number of events)
Function Opt_Calc () // Initiate all optical properties calculation

Events_wave ()
SSA_PAX405_Calc ()
SSA_PAX870_Calc ()
AAE_Calc ()
SAE_Calc ()

End

Function Events_wave () // Make a wave with the name of each Arctic Haze event

Variable i

String wpnt = "E"

make/o/d/n=37/t Events // Change the number of rows according to the Arctic Haze events (e.g. n=__+1)

For (i=0; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__+1)

Events[i] = wpnt+num2str(i)

Endfor

deletpoints/m=0 0,1,Events // The first Arctic Haze event start from E1

End

Function SSA_PAX405_Calc () // Calculate the averaged single scattering albedo (SSA) for each Arctic Haze event

Variable i
Variable j

String wname1 = "PAX405_datetime_end_E"
String wname2 = "PAX405_bsca_h_E"
String wname3 = "PAX405_babs_h_E"

String wname1_temp
String wname2_temp
String wname3_temp

For (i=1; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__+1)

wname1_temp = wname1+num2str(i)
wname2_temp = wname2+num2str(i)
wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

make/o/d/n = (numpts($wname1_temp)) SSA
```

```

For (j=0; j<numpts($wname1_temp); j+=1)
    SSA[j] = fullname2[j] / (fullname2[j] + fullname3[j])
Endfor
// Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n=__+1)
make/o/d/n=37 SSA_avg_405_events, SSA_sdev_405_events, SSA_sem_405_events
wvstats/Q SSA
SSA_avg_405_events[j] = v_avg // Average of SSA values
SSA_sdev_405_events[j] = v_sdev // Standard deviation of SSA values
SSA_sem_405_events[j] = v_sem // Standard error of the SSA mean
Endfor
deletepoints/m=0 0,1,SSA_avg_405_events, SSA_sdev_405_events, SSA_sem_405_events // The first Arctic Haze event start from E1
killwaves SSA
End

Function SSA_PAX870_Calc () // Calculate the averaged single scattering albedo (SSA) for each Arctic Haze event
Variable i
Variable j
String wname1 = "PAX870_datetime_end_E"
String wname2 = "PAX870_bsca_h_E"
String wname3 = "PAX870_babs_h_E"
String wname1_temp
String wname2_temp
String wname3_temp
For (i=1; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__+1)
    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)
Wave fullname = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp
make/o/d/n = (numpts($wname1_temp)) SSA
For (j=0; j<numpts($wname1_temp); j+=1)
    SSA[j] = fullname2[j] / (fullname2[j] + fullname3[j])
Endfor
// Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n=__+1)
make/o/d/n=37 SSA_avg_870_events, SSA_sdev_870_events, SSA_sem_870_events
wvstats/Q SSA
SSA_avg_870_events[j] = v_avg // Average of SSA values
SSA_sdev_870_events[j] = v_sdev // Standard deviation of SSA values
SSA_sem_870_events[j] = v_sem // Standard error of the SSA mean
Endfor
deletepoints/m=0 0,1,SSA_avg_870_events, SSA_sdev_870_events, SSA_sem_870_events // The first Arctic Haze event start from E1
killwaves SSA
End

Function AAE_Calc () // Calculate the averaged absorption Angström exponent (AAE) for each Arctic Haze event
Variable i
Variable j
String wname1 = "PAX405_datetime_end_AE_E"
String wname2 = "PAX405_babs_h_AE_E"
String wname3 = "PAX870_babs_h_AE_E"

```

```

String wname1_temp
String wname2_temp
String wname3_temp

For (i=1; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__+1)

    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)

    Wave fullname = $wname1_temp
    Wave fullname2 = $wname2_temp
    Wave fullname3 = $wname3_temp

    make/o/d/n = (numpnts($wname1_temp)) AAE

    For (j=0; j<numpnts($wname1_temp); j+=1)

        AAE[j] = - (ln(fullname3[j]) - ln(fullname2[j])) / (ln(870) - ln(405))

    Endfor

    // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n=__+1)
    make/o/d/n=37 AAE_avg_events, AAE_sdev_events, AAE_sem_events
    wavestats/Q AAE
    AAE_avg_events[i] = v_avg // Average of AAE values
    AAE_sdev_events[i] = v_sdev // Standard deviation of AAE values
    AAE_sem_events[i] = v_sem // Standard error of the AAE mean

Endfor

deletepoints/m=0 0,1,AAE_avg_events, AAE_sdev_events, AAE_sem_events // The first Arctic Haze event start from E1
killwaves AAE

End

Function SAE_Calc () // Calculate the averaged scattering Angström exponent (SAE) for each Arctic Haze event

Variable i
Variable j

String wname1 = "PAX405_datetime_end_AE_E"
String wname2 = "PAX405_bsca_h_AE_E"
String wname3 = "PAX870_bsca_h_AE_E"

String wname1_temp
String wname2_temp
String wname3_temp

For (i=1; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__+1)

    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)

    Wave fullname = $wname1_temp
    Wave fullname2 = $wname2_temp
    Wave fullname3 = $wname3_temp

    make/o/d/n = (numpnts($wname1_temp)) SAE

    For (j=0; j<numpnts($wname1_temp); j+=1)

        SAE[j] = - (ln(fullname3[j]) - ln(fullname2[j])) / (ln(870) - ln(405))

    Endfor

    // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n=__+1)
    make/o/d/n=37 SAE_avg_events, SAE_sdev_events, SAE_sem_events
    wavestats/Q SAE

    SAE_avg_events[i] = v_avg // Average of SAE values
    SAE_sdev_events[i] = v_sdev // Standard deviation of SAE values
    SAE_sem_events[i] = v_sem // Standard error of the SAE mean

Endfor

deletepoints/m=0 0,1,SAE_avg_events, SAE_sdev_events, SAE_sem_events // The first Arctic Haze event start from E1
killwaves SAE

End

```

## *PAX\_Average\_Bsca+Babs.ipf*

```
// Average of the scattering coefficients at wavelengths of 405 and 870 nm for each Arctic Haze event
// Average of the absorption coefficients at wavelengths of 405 and 870 nm for each Arctic Haze event
// Average extensive optical properties of aerosols for each Arctic Haze event

// Make sure all the PAX waves are written as follows

// Scattering coefficients calculation:
// "PAX###_bsca_h_AE_E#"
// where '#' indicate a number (e.g. wavelength or number of events)

// Absorption coefficients calculation:
// "PAX###_babs_h_AE_E#"
// where '#' indicate a number (e.g. wavelength or number of events)

Function Average_Bsca_Babs () // Initiate all extensive optical properties calculation
    avgBsca_Calc ()
    avgBabs_Calc ()

End

Function avgBsca_Calc () // Calculate the averaged scattering coefficient of each Arctic Haze event
    Variable i
    Variable j

    String wname1 = "PAX405_bsca_h_AE_E"
    String wname2 = "PAX870_bsca_h_AE_E"

    String wname1_temp
    String wname2_temp

    For (i=1; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__+1)
        wname1_temp = wname1+num2str(i)

        Wave fullname = $wname1_temp // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n= __+1)
        make/o/d/n=37 Bsca_avg_405_events, Bsca_sdev_405_events, Bsca_sem_405_events

        wavestats/Q fullname

        Bsca_avg_405_events[i] = v_avg // Average of Bsca values at wavelength of 405 nm
        Bsca_sdev_405_events[i] = v_sdev // Standard deviation of Bsca values at wavelength of 405 nm
        Bsca_sem_405_events[i] = v_sem // Standard error of the Bsca mean at wavelength of 405 nm

    Endfor

    For (i=1; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__+1)
```



```

wname2_temp = wname2+num2str(i)

Wave fullname2 = $wname2_temp
// Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n= __+1)
make/o/d/n=37 Bscav_avg_870_events, Bscav_sdev_870_events, Bscav_sem_870_events

wavestats/Q fullname2

Bscav_avg_870_events[i] = v_avg // Average of Bscav values at wavelength of 870 nm
Bscav_sdev_870_events[i] = v_sdev // Standard deviation of Bscav values at wavelength of 870 nm
Bscav_sem_870_events[i] = v_sem // Standard error of the Bscav mean at wavelength of 870 nm

Endfor

deletepoints/m=0 0,1, Bscav_avg_405_events, Bscav_sdev_405_events, Bscav_sem_405_events, Bscav_avg_870_events, Bscav_sdev_870_events,
deletepoints/m=0 0,1, Bscav_sem_870_events

End

Function avgBabs_Calc () // Calculate the averaged absorption coefficient of each Arctic Haze event

Variable i
Variable j

String wname1 = "PAX405_babs_h_AE_E"
String wname2 = "PAX870_babs_h_AE_E"
String wname1_temp
String wname2_temp

For (i=1; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i< __+1)

wname1_temp = wname1+num2str(i)

Wave fullname = $wname1_temp
// Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n= __+1)
make/o/d/n=37 Babs_avg_405_events, Babs_sdev_405_events, Babs_sem_405_events

wavestats/Q fullname

Babs_avg_405_events[i] = v_avg // Average of Bscav values at wavelength of 405 nm
Babs_sdev_405_events[i] = v_sdev // Standard deviation of Bscav values at wavelength of 405 nm
Babs_sem_405_events[i] = v_sem // Standard error of the Bscav mean at wavelength of 405 nm

Endfor

For (i=1; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i< __+1)

wname2_temp = wname2+num2str(i)

Wave fullname2 = $wname2_temp
// Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n= __+1)
make/o/d/n=37 Babs_avg_870_events, Babs_sdev_870_events, Babs_sem_870_events
wavestats/Q fullname2

Babs_avg_870_events[i] = v_avg // Average of Bscav values at wavelength of 870 nm
Babs_sdev_870_events[i] = v_sdev // Standard deviation of Bscav values at wavelength of 870 nm
Babs_sem_870_events[i] = v_sem // Standard error of the Bscav mean at wavelength of 870 nm

Endfor

deletepoints/m=0 0,1, Babs_avg_405_events, Babs_sdev_405_events, Babs_sem_405_events, Babs_avg_870_events, Babs_sdev_870_events,
deletepoints/m=0 0,1, Babs_sem_870_events

End

```

## *PAX\_QC\_SSA+AAE+SAE.ipf*

```
// Create a linear regression plot for the correlation of scattering and absorption coefficients for two wavelengths (405 and 870 nm)
// and for each Arctic Haze event
// Give the Pearson's linear correlation coefficient (R2) for the correlation of scattering and absorption coefficients for two wavelengths
// (405 and 870 nm) and for each Arctic Haze event

// Make sure all the PAX waves are witten as follows

// Single scattering albedo (SSA) calculation:

// "PAX###_datetime_end_E#"
// "PAX###_bsca_h_E#"
// "PAX###_babs_h_E#"
// where '#' indicate a number (e.g. wavelength or number of events)

// Absorption (AAE) and scattering (SAE) Angström exponents calculation:

// "PAX###_datetime_end_AE_E#"
// "PAX###_bsca_h_AE_E#"
// "PAX###_babs_h_AE_E#"
// where '#' indicate a number (e.g. wavelength or number of events)

Function QC_SSA_AE () // Initiate curve fitting for all the correlation of scattering and absorption coefficients for two wavelengths (405 and 870 nm)
QC_SSA_PAX405 ()
QC_SSA_PAX870 ()
QC_AAE ()
QC_SAE ()

End

Function QC_SSA_PAX405 () // Calculate the R-squared for the correlation between scattering and absorption coefficients measured at wavelength
// of 405 nm, and for each Arctic Haze event

Variable i

String wname1 = "PAX405_datetime_end_E"
String wname2 = "PAX405_bsca_h_E"
String wname3 = "PAX405_babs_h_E"

String wname1_temp
String wname2_temp
String wname3_temp

For (i=1; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__+1)

wname1_temp = wname1+num2str(i)
wname2_temp = wname2+num2str(i)
wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

make/o/d/n=37 SSA_R2_PAX405_events // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n=__+1)
CurveFit/M=2/Q=1/W=0 line, fullname2/X=fullname3/D

SSA_R2_PAX405_events[i] = v_r2 // Correlation coefficient of linear regression of scattering coefficient as a function of absorption coefficient
// measured at wavelength of 405 nm

Endfor

deletepoints/m=0 0,1,SSA_R2_PAX405_events

End

Function QC_SSA_PAX870 () // Calculate the R-squared for the correlation between scattering and absorption coefficients measured at wavelength of
// 870 nm, and for each Arctic Haze event

Variable i

String wname1 = "PAX405_datetime_end_E"
String wname2 = "PAX870_bsca_h_E"
String wname3 = "PAX870_babs_h_E"
```

```

String wname1_temp
String wname2_temp
String wname3_temp

For (i=1; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__+1)

    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

    make/o/d/n=37 SSA_R2_PAX870_events // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n= __+1)
    CurveFit/M=2/Q=1/W=0 line, fullname2/X=fullname3/D

    SSA_R2_PAX870_events[i] = v_r2 // Correlation coefficient of linear regression of scattering coefficient as a function of absorption coefficient
    // measured at wavelength of 870 nm

Endfor

deletepoints/m=0 0,1,SSA_R2_PAX870_events

End

Function QC_AAE () // Calculate the R-squared for the correlation between absorption coefficients measured at two wavelengths (405 and 870 nm),
    // and for each Arctic Haze event

Variable i

String wname1 = "PAX405_datetime_end_AE_E"
String wname2 = "PAX405_babs_h_AE_E"
String wname3 = "PAX870_babs_h_AE_E"

String wname1_temp
String wname2_temp
String wname3_temp

For (i=1; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__+1)

    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

    make/o/d/n=37 AAE_R2_events // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n= __+1)
    CurveFit/M=2/Q=1/W=0 line, fullname2/X=fullname3/D

```

```

AAE_R2_events[i] = v_r2 // Correlation coefficient of linear regression of absorption coefficient at 405 nm as a function of absorption
                        // coefficient at 870 nm

Endfor

deletepoints/m=0 0,1,AAE_R2_events

End

Function QC_SAE () // Calculate the R-squared for the correlation between scattering coefficients measured at two wavelengths (405 and 870 nm),
                  // and for each Arctic Haze event

Variable i

String wname1 = "PAX405_datetime_end_AE_E"
String wname2 = "PAX405_bsca_h_AE_E"
String wname3 = "PAX870_bsca_h_AE_E"

String wname1_temp
String wname2_temp
String wname3_temp

For (i=1; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__+1)
    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

    make/o/d/n=37 SAE_R2_events // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n=__+1)
    CurveFit/M=2/Q=1/W=0 line, fullname2/X=fullname3/D

    SAE_R2_events[i] = v_r2 // Correlation coefficient of linear regression of scattering coefficient at 405 nm as a function of scattering
                        // coefficient at 870 nm

Endfor

deletepoints/m=0 0,1,SAE_R2_events

End

```

## *PAX\_SSA+AAE+SAE\_V2.1.ipf*

```
// Calculate the single scattering albedo (SSA) at wavelengths of 405 nm and 870 nm from the averaged scattering and absorption coefficients for each
// Arctic Haze event
// Calculate the absorption (AAE) and scattering (SAE) Angström exponents from the averaged scattering and absorption coefficients for each
// Arctic Haze event
// Name all Arctic Haze events
// Compute aerosol optical properties from averaged scattering and absorption coefficients for each Arctic Haze event

// Make sure all the PAX waves are written as follows
```

```
// Single scattering albedo (SSA) calculation:
```

```
// "Bsca_avg_###_events"
// "Bsca_sdev_###_events"
// "Bsca_sem_###_events"
// "Babs_avg_###_events"
// "Babs_sdev_###_events"
// "Babs_sem_###_events"
```

```
// where '#' indicate a number (e.g. wavelength)
```

```
// Absorption Angström exponents (AAE) calculation:
```

```
// "Babs_avg_405_events"
// "Babs_sdev_405_events"
// "Babs_sem_405_events"
// "Babs_avg_870_events"
// "Babs_sdev_870_events"
// "Babs_sem_870_events"
```

```
// Scattering Angström exponents (SAE) calculation:
```

```
// "Bsca_avg_405_events"
// "Bsca_sdev_405_events"
// "Bsca_sem_405_events"
// "Bsca_avg_870_events"
// "Bsca_sdev_870_events"
// "Bsca_sem_870_events"
```

```
Function Opt_Calc_V2 () // Initiate all optical properties calculation
```

```
Wave Bsca_avg_405_events
Wave Bsca_sdev_405_events
Wave Bsca_sem_405_events
Wave Bsca_avg_870_events
Wave Bsca_sdev_870_events
Wave Bsca_sem_870_events

Wave Babs_avg_405_events
Wave Babs_sdev_405_events
Wave Babs_sem_405_events
Wave Babs_avg_870_events
Wave Babs_sdev_870_events
Wave Babs_sem_870_events
```

```
Events_wave_V2 ()
SSA_PAX405_Calc_V2 ()
SSA_PAX870_Calc_V2 ()
AAE_Calc_V2 ()
SAE_Calc_V2 ()
```

```
End
```

```
Function Events_wave_V2 () // Make a wave with the name of each Arctic Haze event
```

```
Variable i
```

```
String wpnt = "E"
```

```
make/o/d/n=37/t Events // Change the number of rows according to the Arctic Haze events (e.g. n=__+1)
```

```
For (i=0; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__+1)
```

```
Events[i] = wpnt+num2str(i)
```

```

Endfor

deletpoints/m=0 0,1,Events // The first Arctic Haze event start from E1

End

Function SSA_PAX405_Calc_V2 () // Calculate the single scattering albedo (SSA) for each Arctic Haze event

Wave Bscav_avg_405_events
Wave Bscav_sdev_405_events
Wave Bscav_sem_405_events
Wave Babs_avg_405_events
Wave Babs_sdev_405_events
Wave Babs_sem_405_events

Variable i
// Change the number of events if necessary (e.g. n=__ )
make/o/d/n=36 SSA_avg_405_events_2, SSA_sdev_405_events_2, SSA_sem_405_events_2

For (i=0; i<36; i+=1) // Change the number of events if necessary (e.g. i<__ )
// SSA is defined as the ratio of aerosol scattering coefficient and extinction coefficient, which is the sum of absorption and scattering
// coefficients. SSA ranges from 0 for a completely absorbing or black particle to 1 for a purely scattering or white particle.
SSA_avg_405_events_2[i] = Bscav_avg_405_events[i] / (Bscav_avg_405_events[i] + Babs_avg_405_events[i]) // SSA from
// averaged scattering and absorption coefficients
SSA_sdev_405_events_2[i] = (((Bscav_avg_405_events[i] + Bscav_sdev_405_events[i]) / ((Bscav_avg_405_events[i] -
Bscav_sdev_405_events[i]) + (Babs_avg_405_events[i] - Babs_sdev_405_events[i]))) - ((Bscav_avg_405_events[i] - Bscav_sdev_405_events[i])
/ ((Bscav_avg_405_events[i] + Bscav_sdev_405_events[i]) + (Babs_avg_405_events[i] + Babs_sdev_405_events[i])))) / 2
// Standard deviation based on the propagation of errors (uncertainties)
SSA_sem_405_events_2[i] = (((Bscav_avg_405_events[i] + Bscav_sem_405_events[i]) / ((Bscav_avg_405_events[i] -
Bscav_sem_405_events[i]) + (Babs_avg_405_events[i] - Babs_sem_405_events[i]))) - ((Bscav_avg_405_events[i] - Bscav_sem_405_events[i])
/ ((Bscav_avg_405_events[i] + Bscav_sem_405_events[i]) + (Babs_avg_405_events[i] + Babs_sem_405_events[i])))) / 2
// Standard error based on the propagation of errors (uncertainties)

Endfor

End

Function SSA_PAX870_Calc_V2 () // Calculate the single scattering albedo (SSA) for each Arctic Haze event

Wave Bscav_avg_870_events
Wave Bscav_sdev_870_events
Wave Bscav_sem_870_events
Wave Babs_avg_870_events
Wave Babs_sdev_870_events
Wave Babs_sem_870_events

Variable i
// Change the number of events if necessary (e.g. n=__ )
make/o/d/n=36 SSA_avg_870_events_2, SSA_sdev_870_events_2, SSA_sem_870_events_2

For (i=0; i<36; i+=1) // Change the number of events if necessary (e.g. i<__ )

// SSA is defined as the ratio of aerosol scattering coefficient and extinction coefficient, which is the sum of absorption and scattering
// coefficients. SSA ranges from 0 for a completely absorbing or black particle to 1 for a purely scattering or white particle.
SSA_avg_870_events_2[i] = Bscav_avg_870_events[i] / (Bscav_avg_870_events[i] + Babs_avg_870_events[i]) // SSA from
// averaged scattering and absorption coefficients
SSA_sdev_870_events_2[i] = (((Bscav_avg_870_events[i] + Bscav_sdev_870_events[i]) / ((Bscav_avg_870_events[i] -
Bscav_sdev_870_events[i]) + (Babs_avg_870_events[i] - Babs_sdev_870_events[i]))) - ((Bscav_avg_870_events[i] - Bscav_sdev_870_events[i])
/ ((Bscav_avg_870_events[i] + Bscav_sdev_870_events[i]) + (Babs_avg_870_events[i] + Babs_sdev_870_events[i])))) / 2
// Standard deviation based on the propagation of errors (uncertainties)
SSA_sem_870_events_2[i] = (((Bscav_avg_870_events[i] + Bscav_sem_870_events[i]) / ((Bscav_avg_870_events[i] -
Bscav_sem_870_events[i]) + (Babs_avg_870_events[i] - Babs_sem_870_events[i]))) - ((Bscav_avg_870_events[i] - Bscav_sem_870_events[i])
/ ((Bscav_avg_870_events[i] + Bscav_sem_870_events[i]) + (Babs_avg_870_events[i] + Babs_sem_870_events[i])))) / 2
// Standard error based on the propagation of errors (uncertainties)

```

```

Endfor

End

Function AAE_Calc_V2 () // Calculate the average absorption Angström exponent (AAE) for each Arctic Haze event

Wave Babs_avg_405_events
Wave Babs_sdev_405_events
Wave Babs_sem_405_events
Wave Babs_avg_870_events
Wave Babs_sdev_870_events
Wave Babs_sem_870_events

Variable i

make/o/d/n=36 AAE_avg_events_2, AAE_sdev_events_2, AAE_sem_events_2 // Change the number of events if necessary (e.g. n=___)

For (i=0; i<36; i+=1) // Change the number of events if necessary (e.g. i<__)
// AAE represents the wavelength dependence of absorption and depends on the composition of absorbing aerosols
AAE_avg_events_2[i] = - (ln(Babs_avg_870_events[i]) - ln(Babs_avg_405_events[i])) / (ln(870) - ln(405)) // AAE from averaged scattering
// and absorption coefficients
AAE_sdev_events_2[i] = (( - (ln(Babs_avg_870_events[i] + Babs_sdev_870_events[i]) - ln(Babs_avg_405_events[i] +
Babs_sdev_405_events[i])) / (ln(870) - ln(405))) + ((ln(Babs_avg_870_events[i] - Babs_sdev_870_events[i]) - ln(Babs_avg_405_events[i] -
Babs_sdev_405_events[i])) / (ln(870) - ln(405)))) / 2 // Standard deviation based on the propagation of errors (uncertainties)
AAE_sem_events_2[i] = (( - (ln(Babs_avg_870_events[i] + Babs_sem_870_events[i]) - ln(Babs_avg_405_events[i] +
Babs_sem_405_events[i])) / (ln(870) - ln(405))) + ((ln(Babs_avg_870_events[i] - Babs_sem_870_events[i]) - ln(Babs_avg_405_events[i] -
Babs_sem_405_events[i])) / (ln(870) - ln(405)))) / 2 // Standard error based on the propagation of errors (uncertainties)

Endfor

End

Function SAE_Calc_V2 () // Calculate the average scattering Angström exponent (SAE) for each Arctic Haze event

Wave Bsca_avg_405_events
Wave Bsca_sdev_405_events
Wave Bsca_sem_405_events
Wave Bsca_avg_870_events
Wave Bsca_sdev_870_events
Wave Bsca_sem_870_events

Variable i

make/o/d/n=36 SAE_avg_events_2, SAE_sdev_events_2, SAE_sem_events_2 // Change the number of events if necessary (e.g. n=___)

For (i=0; i<36; i+=1) // Change the number of events if necessary (e.g. i<__)

// SAE represents the wavelength dependence of scattering and is inversely proportional to the particle size
SAE_avg_events_2[i] = - (ln(Bsca_avg_870_events[i]) - ln(Bsca_avg_405_events[i])) / (ln(870) - ln(405)) // SAE from averaged scattering
// and absorption coefficients
SAE_sdev_events_2[i] = (( - (ln(Bsca_avg_870_events[i] + Bsca_sdev_870_events[i]) - ln(Bsca_avg_405_events[i] +
Bsca_sdev_405_events[i])) / (ln(870) - ln(405))) + ((ln(Bsca_avg_870_events[i] - Bsca_sdev_870_events[i]) - ln(Bsca_avg_405_events[i] -
Bsca_sdev_405_events[i])) / (ln(870) - ln(405)))) / 2 // Standard deviation based on the propagation of errors (uncertainties)
SAE_sem_events_2[i] = (( - (ln(Bsca_avg_870_events[i] + Bsca_sem_870_events[i]) - ln(Bsca_avg_405_events[i] +
Bsca_sem_405_events[i])) / (ln(870) - ln(405))) + ((ln(Bsca_avg_870_events[i] - Bsca_sem_870_events[i]) - ln(Bsca_avg_405_events[i] -
Bsca_sem_405_events[i])) / (ln(870) - ln(405)))) / 2 // Standard error based on the propagation of errors (uncertainties)

Endfor

End

```

## *PAX\_Linear\_regression.ipf*

```
// Create a linear regression plot for the correlation of scattering and absorption coefficients for two wavelengths (405 and 870 nm), and for
// each Arctic Haze event
// Give the slope and associated error for the correlation of scattering and absorption coefficients for two wavelengths (405 and 870 nm), and for
// each Arctic Haze event

// Make sure all the PAX waves are witten as follows

// Single scattering albedo (SSA) calculation:

// "PAX###_datetime_end_E#"
// "PAX###_bsca_h_E#"
// "PAX###_babs_h_E#"
// where '#' indicate a number (e.g. wavelength or number of events)

// Absorption (AAE) and scattering (SAE) Angström exponents calculation:

// "PAX###_datetime_end_AE_E#"
// "PAX###_bsca_h_AE_E#"
// "PAX###_babs_h_AE_E#"
// where '#' indicate a number (e.g. wavelength or number of events)

Function LinearReg_SSA_AE () // Initiate curve fitting for all the correlation of scattering and absorption coefficients for two wavelengths
// (405 and 870 nm)

// ** ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ** **
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Wave W_coef
Wave W_sigma

LinearReg_SSA_PAX405 ()
LinearReg_SSA_PAX870 ()
LinearReg_AAE ()
LinearReg_SAE ()

End

Function LinearReg_SSA_PAX405 () // Calculate the slope for the correlation between scattering and absorption coefficients measured at wavelength
// of 405 nm, and for each Arctic Haze event

// ** ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ** **
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Wave W_coef
Wave W_sigma
Variable i
String wname1 = "PAX405_datetime_end_E"
String wname2 = "PAX405_bsca_h_E"
String wname3 = "PAX405_babs_h_E"

String wname1_temp
String wname2_temp
String wname3_temp

For (i=35; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__+1)

wname1_temp = wname1+num2str(i)
wname2_temp = wname2+num2str(i)
wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

make/o/d/n=37 SSA_slope_PAX405_events // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n=__+1)
make/o/d/n=37 SSA_error_PAX405_events // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n=__+1)
make/o/d/n=37 SSA_error2_PAX405_events // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n=__+1)
CurveFit/NTHR=0/ODR=2/Q=1 line fullname2 /X=fullname3 /D
```



```

SSA_slope_PAX405_events[i] = W_coef[1] // Slope from linear regression of scattering coefficient as a function of absorption coefficient
// measured at wavelength of 405 nm
SSA_error_PAX405_events[i] = W_sigma[1] // Standard deviation of the slope from linear regression of scattering coefficient as a function
// of absorption coefficient measured at wavelength of 405 nm
SSA_error2_PAX405_events[i] = W_sigma[1] / sqrt(numprnts(fullname)) // Standard error of the slope from linear regression of scattering
// coefficient as a function of absorption coefficient measured at
// wavelength of 405 nm

Endfor

deletepoints/m=0 0,1,SSA_slope_PAX405_events, SSA_error_PAX405_events, SSA_error2_PAX405_events

End

Function LinearReg_SSA_PAX870 () // Calculate the slope for the correlation between scattering and absorption coefficients measured at wavelength
// of 870 nm, and for each Arctic Haze event

// ** ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ** **
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Wave W_coef
Wave W_sigma
Variable i
String wname1 = "PAX405_datetime_end_E"
String wname2 = "PAX870_bsca_h_E"
String wname3 = "PAX870_babs_h_E"

String wname1_temp
String wname2_temp
String wname3_temp

For (i=35; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__+1)

wname1_temp = wname1+num2str(i)
wname2_temp = wname2+num2str(i)
wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

make/o/d/n=37 SSA_slope_PAX870_events // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n=__+1)
make/o/d/n=37 SSA_error_PAX870_events // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n=__+1)
make/o/d/n=37 SSA_error2_PAX870_events // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n=__+1)
CurveFit/NTHR=0/ODR=2/Q=1 line fullname2 /X=fullname3 /D

SSA_slope_PAX870_events[i] = W_coef[1] // Slope from linear regression of scattering coefficient as a function of absorption coefficient
// measured at wavelength of 405 nm
SSA_error_PAX870_events[i] = W_sigma[1] // Standard deviation of the slope from linear regression of scattering coefficient as a function
// of absorption coefficient measured at wavelength of 405 nm
SSA_error2_PAX870_events[i] = W_sigma[1] / sqrt(numprnts(fullname)) // Standard error of the slope from linear regression of scattering
// coefficient as a function of absorption coefficient measured at
// wavelength of 405 nm

Endfor

deletepoints/m=0 0,1,SSA_slope_PAX870_events, SSA_error_PAX870_events, SSA_error2_PAX870_events

End

Function LinearReg_AAE () // Calculate the slope for the correlation between absorption coefficients measured at two wavelengths (405 and 870 nm),
// and for each Arctic Haze event

// ** ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ** **
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Wave W_coef
Wave W_sigma
Variable i

```

```

String wname1 = "PAX405_datetime_end_AE_E"
String wname2 = "PAX405_babs_h_AE_E"
String wname3 = "PAX870_babs_h_AE_E"

String wname1_temp
String wname2_temp
String wname3_temp

For (i=35; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__+1)

    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

    make/o/d/n=37 AAE_slope_events // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n=__+1)
    make/o/d/n=37 AAE_error_events // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n=__+1)
    make/o/d/n=37 AAE_error2_events // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n=__+1)
    CurveFit/NTHR=0/ODR=2/Q=1 line fullname2 /X=fullname3 /D
    AAE_slope_events[i] = W_coef[1] // Slope from linear regression of scattering coefficient as a function of absorption coefficient measured at
    // wavelengths of 405 and 870 nm
    AAE_error_events[i] = W_sigma[1] // Standard deviation of the slope from linear regression of scattering coefficient as a function of
    // absorption coefficient measured at wavelengths of 405 and 870 nm
    AAE_error2_events[i] = W_sigma[1] / sqrt(numpts(fullname)) // Standard error of the slope from linear regression of scattering coefficient
    // as a function of absorption coefficient measured at wavelengths of 405
    // and 870 nm

Endfor

deletepoints/m=0 0,1,AAE_slope_events, AAE_error_events, AAE_error2_events

End

Function LinearReg_SAE () // Calculate the slope for the correlation between scattering coefficients measured at two wavelengths (405 and 870 nm),
// and for each Arctic Haze event

// ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED **
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Wave W_coef
Wave W_sigma
Variable i

```

```

String wname1 = "PAX405_datetime_end_AE_E"
String wname2 = "PAX405_bsca_h_AE_E"
String wname3 = "PAX870_bsca_h_AE_E"

String wname1_temp
String wname2_temp
String wname3_temp

For (i=35; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__+1)

    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

make/o/d/n=37 SAE_slope_events // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n=__+1)
make/o/d/n=37 SAE_error_events // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n=__+1)
make/o/d/n=37 SAE_error2_events // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. n=__+1)
CurveFit/NTHR=0/ODR=2/Q=1 line fullname2 /X=fullname3 /D
SAE_slope_events[i] = W_coef[1] // Slope from linear regression of scattering coefficient as a function of absorption coefficient measured at
// wavelengths of 405 and 870 nm
SAE_error_events[i] = W_sigma[1] // Standard deviation of the slope from linear regression of scattering coefficient as a function of
// absorption coefficient measured at wavelengths of 405 and 870 nm
SAE_error2_events[i] = W_sigma[1] / sqrt(numpts(fullname)) // Standard error of the slope from linear regression of scattering coefficient
// as a function of absorption coefficient measured at wavelengths of 405
// and 870 nm

Endfor

deletepoints/m=0 0,1,SAE_slope_events, SAE_error_events, SAE_error2_events

End

```

## *PAX\_SSA+AAE+SAE\_V3.ipf*

```
// Determine the single scattering albedo (SSA) at wavelengths of 405 nm and 870 nm for each Arctic Haze event
// Determine the absorption (AAE) and scattering (SAE) Angström exponents for each Arctic Haze event
// Name all Arctic Haze events
// Compute aerosol optical properties for each Arctic Haze event

// Make sure you have the following waves:

// "SSA_slope_PAX405_events"
// "SSA_error_PAX405_events"
// "SSA_error2_PAX405_events"
// "SSA_slope_PAX870_events"
// "SSA_error_PAX870_events"
// "SSA_error2_PAX870_events"
// "AAE_slope_events"
// "AAE_error_events"
// "AAE_error2_events"
// "SAE_slope_events"
// "SAE_error_events"
// "SAE_error2_events"

Function Opt_Calc () // Initiate all optical properties calculation
Wave SSA_slope_PAX405_events
Wave SSA_error_PAX405_events
Wave SSA_error2_PAX405_events
Wave SSA_slope_PAX870_events
Wave SSA_error_PAX870_events
Wave SSA_error2_PAX870_events
Wave AAE_slope_events
Wave AAE_error_events
Wave AAE_error2_events
Wave SAE_slope_events
Wave SAE_error_events
Wave SAE_error2_events

Events_wave ()
SSA_PAX405_Calc ()
SSA_PAX870_Calc ()
AAE_Calc ()
SAE_Calc ()

End

Function Events_wave () // Make a wave with the name of each Arctic Haze event

Variable i

String wpnt = "E"
make/o/d/n=37/t Events // Change the number of rows according to the Arctic Haze events (e.g. n=__+1)

For (i=0; i<37; i+=1) // Change the number of Arctic Haze events if necessary (e.g. i<__+1)

    Events[i] = wpnt+num2str(i)

Endfor

deletepoints/m=0 0,1,Events // The first Arctic Haze event start from E1

End

Function SSA_PAX405_Calc () // Calculate the single scattering albedo (SSA) at 405 nm from the regression slope for each Arctic Haze event

Wave SSA_slope_PAX405_events
Wave SSA_error_PAX405_events
Wave SSA_error2_PAX405_events

Variable i

make/o/d/n = (numpnts(SSA_slope_PAX405_events)) SSA_coef_405_events
make/o/d/n = (numpnts(SSA_error_PAX405_events)) SSA_sdev_405_events
make/o/d/n = (numpnts(SSA_error2_PAX405_events)) SSA_sem_405_events

For (i=0; i<numpnts(SSA_slope_PAX405_events); i+=1)
```

```

SSA_coef_405_events[i] = 1 / (1 + (1 / SSA_slope_PAX405_events[i]))
SSA_sdev_405_events[i] = ((1 / (1 + (1 / (SSA_slope_PAX405_events[i] + SSA_error_PAX405_events[i]))) -
(1 / (1 + (1 / (SSA_slope_PAX405_events[i] - SSA_error_PAX405_events[i]))))))/2
SSA_sem_405_events[i] = ((1 / (1 + (1 / (SSA_slope_PAX405_events[i] + SSA_error2_PAX405_events[i]))) -
(1 / (1 + (1 / (SSA_slope_PAX405_events[i] - SSA_error2_PAX405_events[i]))))))/2

Endfor

End

Function SSA_PAX870_Calc () // Calculate the single scattering albedo (SSA) at 870 nm from the regression slope for each Arctic Haze event

Wave SSA_slope_PAX870_events
Wave SSA_error_PAX870_events
Wave SSA_error2_PAX870_events

Variable i

make/o/d/n = (numpnts(SSA_slope_PAX870_events)) SSA_coef_870_events
make/o/d/n = (numpnts(SSA_error_PAX870_events)) SSA_sdev_870_events
make/o/d/n = (numpnts(SSA_error2_PAX870_events)) SSA_sem_870_events

For (i=0; i<numpnts(SSA_slope_PAX870_events); i+=1)
SSA_coef_870_events[i] = 1 / (1 + (1 / SSA_slope_PAX870_events[i]))
SSA_sdev_870_events[i] = ((1 / (1 + (1 / (SSA_slope_PAX870_events[i] + SSA_error_PAX870_events[i]))) -
(1 / (1 + (1 / (SSA_slope_PAX870_events[i] - SSA_error_PAX870_events[i]))))))/2
SSA_sem_870_events[i] = ((1 / (1 + (1 / (SSA_slope_PAX870_events[i] + SSA_error2_PAX870_events[i]))) -
(1 / (1 + (1 / (SSA_slope_PAX870_events[i] - SSA_error2_PAX870_events[i]))))))/2

Endfor

End

Function AAE_Calc () // Calculate the absorption Angström exponent (AAE) from the regression slope for each Arctic Haze event

Wave AAE_slope_events
Wave AAE_error_events
Wave AAE_error2_events

Variable i

make/o/d/n = (numpnts(AAE_slope_events)) AAE_coef_events
make/o/d/n = (numpnts(AAE_error_events)) AAE_sdev_events
make/o/d/n = (numpnts(AAE_error2_events)) AAE_sem_events

For (i=0; i<numpnts(AAE_slope_events); i+=1)

```

```

AAE_coef_events[i] = -(ln(AAE_slope_events[i])) / (ln(405/870))
AAE_sdev_events[i] = ((- (ln(AAE_slope_events[i] + AAE_error_events[i])) / (ln(405/870))) +
((ln(AAE_slope_events[i] - AAE_error_events[i])) / (ln(405/870))))/2
AAE_sem_events[i] = ((- (ln(AAE_slope_events[i] + AAE_error2_events[i])) / (ln(405/870))) +
((ln(AAE_slope_events[i] - AAE_error2_events[i])) / (ln(405/870))))/2

Endfor

End

Function SAE_Calc () // Calculate the absorption Angström exponent (AAE) from the regression slope for each Arctic Haze event

Wave SAE_slope_events
Wave SAE_error_events
Wave SAE_error2_events

Variable i

make/o/d/n = (numpnts(SAE_slope_events)) SAE_coef_events
make/o/d/n = (numpnts(SAE_error_events)) SAE_sdev_events
make/o/d/n = (numpnts(SAE_error2_events)) SAE_sem_events

For (i=0; i<numpnts(SAE_slope_events); i+=1)
SAE_coef_events[i] = -(ln(SAE_slope_events[i])) / (ln(405/870))
SAE_sdev_events[i] = ((- (ln(SAE_slope_events[i] + SAE_error_events[i])) / (ln(405/870))) +
((ln(SAE_slope_events[i] - SAE_error_events[i])) / (ln(405/870))))/2
SAE_sem_events[i] = ((- (ln(SAE_slope_events[i] + SAE_error2_events[i])) / (ln(405/870))) +
((ln(SAE_slope_events[i] - SAE_error2_events[i])) / (ln(405/870))))/2

Endfor

End

```

### III. Calcul de l'indice de réfraction complexe

La méthode d'intersection des contours de PyMieScatt (*Python Mie Scattering package*), un code de programmation traduit en langage de Python, a été utilisée pour extraire les indices de réfraction à partir des données optiques et de distribution en taille des événements d'aérosols mesurés au laboratoire PEARL. Le script informatique est basé sur le traitement de la théorie de la diffusion de Mie par Borhen et Huffman. Un article rédigé par Benjamin J. Sumlin qui décrit le développement des fonctions inverses de la théorie de Mie du module PyMieScatt a été publié en 2018 dans le *Journal of Quantative Spectroscopy and Radiative Transfer*. Ainsi, le lecteur est redirigé vers ce manuscrit pour des informations plus détaillées relatives au fonctionnement de la méthode inverse. La résolution du problème inverse de la théorie de Mie se sert des versions les plus récentes à jour du langage de programmation Python (v3.7) et du module PyMieScatt (v1.7.4). Le logiciel libre Spyder 3.3.2 est un environnement de développement intégré qui a été spécialement utilisé pour interpréter le langage Python et ses codes de programmation dans le cadre de cette recherche. De plus, un code écrit en langage de Python a été créé pour permettre l'importation et l'intégration des données de chaque événement d'aérosols dans le module PyMieScatt. Le code développé par l'auteur requiert l'accès à des bibliothèques d'usage scientifique comme NumPy (v1.15.4), SciPy (v1.1.0) et Pandas (v0.23.4). La description abrégée du code est donnée ci-dessous.

```

# -*- coding: utf-8 -*-
"""
Created on Wed Dec 11 10:12:12 2019

@author: Andy
"""

### Importing optical data measured with two Photoacoustic Extinctionmeters (PAX) at wavelengths of 405nm and 870nm,
### respectively, in Python
### Importing size distribution data (size cut at 5 um) collected using a Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS)
### and an Optical Particle Counter (OPC) as a 2D array in Python
### Calculating mean concentration of each diameter bin or column of the particle size distribution
### Calculating the average and standard error of optical data at both wavelengths
### Importing combined SMPS and OPC diameters data as a single list in Python
### Retrieving the aerosol complex refractive index for each aerosol event using PyMieScatt
### Errors associated with aerosol light scattering and absorption measurements are shown as patches of red
### (error on scattering measurements) and blue (error on absorption measurements)

#1# Make sure all data file names are written as follow:

## Absorption coefficient (Babs) data measured at wavelength of 405nm and 870nm
# "PAX405_babs_h_AE_E[].csv" => list-like (list of values)
# "PAX405_babs_h_AE_E[].csv" => list-like (list of values)
# "PAX870_babs_h_AE_E[].csv" => list-like (list of values)
# "PAX870_babs_h_AE_E[].csv" => list-like (list of values)
# where "[]" indicate the number of events

## Scattering coefficient (Bsca) data measured at wavelength of 405nm and 870nm
# "PAX405_bsca_h_AE_E[].csv" => list-like (list of values)
# "PAX405_bsca_h_AE_E[].csv" => list-like (list of values)
# "PAX870_bsca_h_AE_E[].csv" => list-like (list of values)
# "PAX870_bsca_h_AE_E[].csv" => list-like (list of values)
# where "[]" indicate the number of events

## Combined SMPS and OPC diameters data
# "SMPS_OPC_diameter.csv" => list-like (list of values)

## Size distribution data form the SMPS and OPC
# "SMPS_OPC_Nmatrix_h_E[].csv" => list-like / numpy.dnarray
# where "[]" indicate the number of events

#2# Also make sure that the structure and content of the data files are as described below:

## Check carefully that all data files are in .csv format
## The first line of the file is use as the column names (header)
## A whitespace is used as "NaN" when the data are missing
## The particle diameter and size distribution data files are created for each event
## Optical data at a given wavelength for x events are grouped into a single data file
## Particle size distribution and optical data are expressed as a list of values (time series)
## SMPS and OPC diameters are combined into a single list

#3# It is very likely that you will need to make some changes to the procedure described below including:
## The location of each data file or file path
## The file names
## The number of studied events

#4# NumPy and Pandas packages are required to use the code below and they must already be installed in Python

#5# Source code and user's guide for PyMieScatt package are available at
# https://pymiescatt.readthedocs.io/en/latest/

## For more details on the contour intersection inversion method, please see
## "Sumlin BJ, Heinson WR, Chakrabarty RK. Retrieving the Aerosol Complex Refractive Index using PyMieScatt:
## A Mie Computational Package with Visualization Capabilities. J. Quant. Spectros. Rad. Trans. 2017"

## For more details on the parameters used in the contour intersection inversion functions, please see
## https://pymiescatt.readthedocs.io/en/latest/inverse.html

###
###
###

#%#
### Importing SMPS+OPC diameter values as a single list in Python ###

import numpy as np

dia = np.loadtxt("C:/Users/SMPS_OPC_diameter_corr2.csv", dtype=float, delimiter=",", skiprows=1)

```



```

dp = dia.tolist()

#####
### Importing SMPS+OPC size distribution values as an ndarray in Python ###

import numpy as np

ndp_E1 = np.genfromtxt("C:/Users/SMPS_OPC_Nmatrix_h_E1_corr2.csv", delimiter=",", skip_header=1, missing_values=" ")
ndp_E1_avg = np.nanmean(ndp_E1, axis=0, dtype=float)

#####
### Importing absorption coefficients values measured at wavelength of 405nm as a single list in Python ###

import pandas as pd
import numpy as np
from scipy import stats

opt_data1 = pd.read_csv("C:/Users/Babs/PAX405_babs_h_AE_E1_E30.csv", header=0, skiprows=None, na_values=" ")

Babs_405_E1 = opt_data1['PAX405_babs_h_AE_E1'].values.tolist()
Babs_405_E1_avg = np.nanmean(Babs_405_E1)
Babs_405_E1_sem = stats.sem(Babs_405_E1, nan_policy='omit')
Babs_405_E1_meas = [Babs_405_E1_avg, Babs_405_E1_sem]

#####
### Importing scattering coefficients values measured at wavelength of 405nm as a single list in Python ###

import pandas as pd
import numpy as np
from scipy import stats

opt_data1 = pd.read_csv("C:/Users/PAX405_bsca_h_AE_E1_E30.csv", header=0, skiprows=None, na_values=" ")

Bsca_405_E1 = opt_data1['PAX405_bsca_h_AE_E1'].values.tolist()
Bsca_405_E1_avg = np.nanmean(Bsca_405_E1)
Bsca_405_E1_sem = stats.sem(Bsca_405_E1, nan_policy='omit')
Bsca_405_E1_meas = [Bsca_405_E1_avg, Bsca_405_E1_sem]

#####
### Importing absorption coefficients values measured at wavelength of 870nm as a single list in Python ###

import pandas as pd
import numpy as np
from scipy import stats

opt_data1 = pd.read_csv("C:/Users/PAX870_babs_h_AE_E1_E30.csv", header=0, skiprows=None, na_values=" ")

Babs_870_E1 = opt_data1['PAX870_babs_h_AE_E1'].values.tolist()
Babs_870_E1_avg = np.nanmean(Babs_870_E1)
Babs_870_E1_sem = stats.sem(Babs_870_E1, nan_policy='omit')
Babs_870_E1_meas = [Babs_870_E1_avg, Babs_870_E1_sem]

#####
### Importing scattering coefficients values measured at wavelength of 870nm as a single list in Python ###

import pandas as pd
import numpy as np
from scipy import stats

opt_data1 = pd.read_csv("C:/Users/PAX870_bsca_h_AE_E1_E30.csv", header=0, skiprows=None, na_values=" ")

Bsca_870_E1 = opt_data1['PAX870_bsca_h_AE_E1'].values.tolist()
Bsca_870_E1_avg = np.nanmean(Bsca_870_E1)
Bsca_870_E1_sem = stats.sem(Bsca_870_E1, nan_policy='omit')
Bsca_870_E1_meas = [Bsca_870_E1_avg, Bsca_870_E1_sem]

#####
### Computes complex refractive index at wavelength of 405nm using extensive optical and physical properties
### as input

import PyMieScatt as ps

ps.ContourIntersection_SD(Bsca_405_E1_meas, Babs_405_E1_meas, 405, dp, ndp_E1_avg)

#####
### Computes complex refractive index at wavelength of 870nm using extensive optical and physical properties
### as input

import PyMieScatt as ps

ps.ContourIntersection_SD(Bsca_870_E1_meas, Babs_870_E1_meas, 870, dp, ndp_E1_avg)

```

## **IV. Corrélation entre la diffusion et les concentrations des aérosols**

Les fonctions qui ont servies à établir des corrélation entre la diffusion à 405 et 870 nm et la concentration en nombre des aérosols pour différents intervalles de taille sont décrites en détail dans les pages suivantes. Les concentrations intégrées de particules de taille supérieure à 50, 100, 200, 300 et 500 nm ont été comparées, de même que la concentration totale en nombre de particules (0.01 – 5  $\mu\text{m}$ ). Les mesures de concentration d'aérosols sont dérivées à la fois du SMPS, de l'OPC et de l'APS pour seulement les hivers et les printemps de 2016 à 2017. Les calculs relatifs à la concentration en masse et de l'aire de surface des aérosols ne sont pas présentés.

```

// Calculate integrated number concentration from the combined Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) and
// Optical Particle Counter (OPC) size distributions for each season
// Calculate integrated number concentration from the combined Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) and
// Aerodynamic Particle Sizer (APS) size distributions for each season
// Calculate the normalised mass concentration (dM/dlogDp) and mass concentration (dM) for each season
// Calculate the normalised surface area concentration (dS/dlogDp) and surface area concentration (dS) for each season
// Integrate number concentration of >50 nm particles, >100 nm particles, >200 nm particles, >300 nm particles, >500 nm particles measured
// with SMPS and OPC or APS for each season
// Integrated total number, mass, and surface area concentration measured by SMPS and OPC or APS for each season
// Plot between scattering coefficient at 405 nm and number concentration of >50 nm particles, >100 nm particles, >200 nm particles,
// >300 nm particles, >500 nm particles, and total number of particles, as well as the total mass and surface area of particles measured
// with SMPS and OPC or APS for each season
// Plot between absorption coefficient at 405 nm and number concentration of >50 nm particles, >100 nm particles, >200 nm particles,
// >300 nm particles, >500 nm particles, and total number of particles, as well as the total mass and surface area of particles measured
// with SMPS and OPC or APS for each season
// Plot between scattering coefficient at 870 nm and number concentration of >50 nm particles, >100 nm particles, >200 nm particles,
// >300 nm particles, >500 nm particles, and total number of particles, as well as the total mass and surface area of particles measured
// with SMPS and OPC or APS for each season
// Plot between absorption coefficient at 870 nm and number concentration of >50 nm particles, >100 nm particles, >200 nm particles,
// >300 nm particles, >500 nm particles, and total number of particles, as well as the total mass and surface area of particles measured
// with SMPS and OPC or APS for each season

// Pay close attention to the units of your inputs. If you use other units, your outputs may not make sense.

// Number concentrations are expressed as #/cm^3
// Mass concentrations are expressed as ug/cm^3
// Surface area concentrations are expressed as nm^2/cm^3
// Particle diameters are always in nanometers (nm)

// Make sure all the SMPS and PAX waves are witten as follows

// "SMPS_OPC_Nmatrix_dlogDp_h_WS#"
// "SMPS_OPC_Nmatrix_dlogDp_h_W#"
// "SMPS_OPC_Nmatrix_dlogDp_h_S#"
// "SMPS_OPC_datetime_end_WS#"
// "SMPS_OPC_datetime_end_W#"
// "SMPS_OPC_datetime_end_S#"
// "SMPS_OPC_dlogDp"
// "SMPS_OPC_diameter"
// "SMPS_APS_Nmatrix_dlogDp_h_WS#"
// "SMPS_APS_Nmatrix_dlogDp_h_W#"
// "SMPS_APS_Nmatrix_dlogDp_h_S#"
// "SMPS_APS_datetime_end_WS#"
// "SMPS_APS_datetime_end_W#"
// "SMPS_APS_datetime_end_S#"
// "SMPS_APS_dlogDp"
// "SMPS_APS_diameter"
// "PAX405_bsca_h_WS#"
// "PAX405_bsca_h_W#"
// "PAX405_bsca_h_S#"
// "PAX870_bsca_h_WS#"
// "PAX870_bsca_h_W#"
// "PAX870_bsca_h_S#"
// where '#' indicate a number (e.g. year)

```

```

Function SMPS OPC_dNlogDpTodN () // Convert dN/dlogDp to dN concentration matrix
// ** ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ** **
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Wave SMPS OPC_dlogDp

Variable i
Variable j
Variable k

String wname1 = "SMPS OPC_Nmatrix_dlogDp_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "SMPS OPC_Nmatrix_dlogDp_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "SMPS OPC_Nmatrix_dlogDp_h_S"
String wname3_temp

For (i=17; i<19; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)

    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname1 = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

String nname1 = "SMPS OPC_Nmatrix_h_WS"
String nname1_temp
String nname2 = "SMPS OPC_Nmatrix_h_W"
String nname2_temp
String nname3 = "SMPS OPC_Nmatrix_h_S"
String nname3_temp

    nname1_temp = nname1+num2str(i)
    nname2_temp = nname2+num2str(i)
    nname3_temp = nname3+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nname1_temp
Wave nfullname2 = $nname2_temp
Wave nfullname3 = $nname3_temp

duplicate/o $wname1_temp, $nname1_temp
duplicate/o $wname2_temp, $nname2_temp
duplicate/o $wname3_temp, $nname3_temp

For (j=0; j<dimsize(fullname1, 0); j+=1)
    For (k=0; k<dimsize(fullname1, 1); k+=1)

        nfullname1[j][k] = fullname1[j][k]*SMPS OPC_dlogDp[k]

    Endfor
Endfor

For (j=0; j<dimsize(fullname2, 0); j+=1)
    For (k=0; k<dimsize(fullname2, 1); k+=1)

        nfullname2[j][k] = fullname2[j][k]*SMPS OPC_dlogDp[k]

    Endfor
Endfor

For (j=0; j<dimsize(fullname3, 0); j+=1)
    For (k=0; k<dimsize(fullname3, 1); k+=1)

        nfullname3[j][k] = fullname3[j][k]*SMPS OPC_dlogDp[k]

    Endfor
Endfor

Endfor

End

```

```

Function SMPS_APS_dNlogDpTodN () // Convert dN/dlogDp to dN concentration matrix
// *** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ***
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Wave SMPS_APS_dlogDp

Variable i
Variable j
Variable k

String wname1 = "SMPS_APS_Nmatrix_dlogDp_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "SMPS_APS_Nmatrix_dlogDp_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "SMPS_APS_Nmatrix_dlogDp_h_S"
String wname3_temp

For (i=19; i<20; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)

    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname1 = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

String nwnname1 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_WS"
String nwnname1_temp
String nwnname2 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_W"
String nwnname2_temp
String nwnname3 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_S"
String nwnname3_temp

    nwnname1_temp = nwnname1+num2str(i)
    nwnname2_temp = nwnname2+num2str(i)
    nwnname3_temp = nwnname3+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nwnname1_temp
Wave nfullname2 = $nwnname2_temp
Wave nfullname3 = $nwnname3_temp

duplicate/o $wname1_temp, $nwnname1_temp
duplicate/o $wname2_temp, $nwnname2_temp
duplicate/o $wname3_temp, $nwnname3_temp

For (j=0; j<dimsize(fullname1, 0); j+=1)
    For (k=0; k<dimsize(fullname1, 1); k+=1)

        nfullname1[j][k] = fullname1[j][k]*SMPS_APS_dlogDp[k]

    Endfor
Endfor

For (j=0; j<dimsize(fullname2, 0); j+=1)
    For (k=0; k<dimsize(fullname2, 1); k+=1)

        nfullname2[j][k] = fullname2[j][k]*SMPS_APS_dlogDp[k]

    Endfor
Endfor

For (j=0; j<dimsize(fullname3, 0); j+=1)
    For (k=0; k<dimsize(fullname3, 1); k+=1)

        nfullname3[j][k] = fullname3[j][k]*SMPS_APS_dlogDp[k]

    Endfor
Endfor

Endfor

End

Function SMPS_OPC_N50 () // Calculate the integrated number concentrations of >50 nm particles for each event

```

```
// ** ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ** **
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"
```

```
Variable i
```

```
String wname1 = "SMPS_OPC_Nmatrix_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "SMPS_OPC_Nmatrix_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "SMPS_OPC_Nmatrix_h_S"
String wname3_temp
```

```
For (i=17; i<19; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<_+1)
```

```
wname1_temp = wname1+num2str(i)
wname2_temp = wname2+num2str(i)
wname3_temp = wname3+num2str(i)
```

```
Wave fullname1 = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp
```

```
String nwnname1 = "SMPS_OPC_>N50_h_WS"
String nwnname1_temp
String nwnname2 = "SMPS_OPC_>N50_h_W"
String nwnname2_temp
String nwnname3 = "SMPS_OPC_>N50_h_S"
String nwnname3_temp
```

```
nwnname1_temp = nwnname1+num2str(i)
nwnname2_temp = nwnname2+num2str(i)
nwnname3_temp = nwnname3+num2str(i)
```

```
Wave nfullname1 = $nwnname1_temp
Wave nfullname2 = $nwnname2_temp
Wave nfullname3 = $nwnname3_temp
```

```
duplicate/o $wname1_temp, $nwnname1_temp
duplicate/o $wname2_temp, $nwnname2_temp
duplicate/o $wname3_temp, $nwnname3_temp
```

```
redimension/n=-1 $nwnname1_temp
redimension/n=-1 $nwnname2_temp
redimension/n=-1 $nwnname3_temp
```

```
nfullname1 = fullname1[p][22] + fullname1[p][23] + fullname1[p][24] + fullname1[p][25] + fullname1[p][26] + fullname1[p][27] +
fullname1[p][28] + fullname1[p][29] + fullname1[p][30] + fullname1[p][31] + fullname1[p][32] + fullname1[p][33] + fullname1[p][34] +
fullname1[p][35] + fullname1[p][36] + fullname1[p][37] + fullname1[p][38] + fullname1[p][39] + fullname1[p][40] + fullname1[p][41] +
fullname1[p][42] + fullname1[p][43] + fullname1[p][44] + fullname1[p][45] + fullname1[p][46] + fullname1[p][47] + fullname1[p][48] +
fullname1[p][49] + fullname1[p][50] + fullname1[p][51]
nfullname2 = fullname2[p][22] + fullname2[p][23] + fullname2[p][24] + fullname2[p][25] + fullname2[p][26] + fullname2[p][27] +
fullname2[p][28] + fullname2[p][29] + fullname2[p][30] + fullname2[p][31] + fullname2[p][32] + fullname2[p][33] + fullname2[p][34] +
fullname2[p][35] + fullname2[p][36] + fullname2[p][37] + fullname2[p][38] + fullname2[p][39] + fullname2[p][40] + fullname2[p][41] +
fullname2[p][42] + fullname2[p][43] + fullname2[p][44] + fullname2[p][45] + fullname2[p][46] + fullname2[p][47] + fullname2[p][48] +
fullname2[p][49] + fullname2[p][50] + fullname2[p][51]
nfullname3 = fullname3[p][22] + fullname3[p][23] + fullname3[p][24] + fullname3[p][25] + fullname3[p][26] + fullname3[p][27] +
fullname3[p][28] + fullname3[p][29] + fullname3[p][30] + fullname3[p][31] + fullname3[p][32] + fullname3[p][33] + fullname3[p][34] +
fullname3[p][35] + fullname3[p][36] + fullname3[p][37] + fullname3[p][38] + fullname3[p][39] + fullname3[p][40] + fullname3[p][41] +
fullname3[p][42] + fullname3[p][43] + fullname3[p][44] + fullname3[p][45] + fullname3[p][46] + fullname3[p][47] + fullname3[p][48] +
fullname3[p][49] + fullname3[p][50] + fullname3[p][51]
```

```
Endfor
```

```
End
```

```
Function SMPS_APS_N50 () // Calculate the integrated number concentrations of >50 nm particles for each event
```

```
// ** ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ** **
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"
```

```
Variable i
```

```

String wname1 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_S"
String wname3_temp

For (i=19; i<20; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)

    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname1 = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

String nwnname1 = "SMPS_APS_>N50_h_WS"
String nwnname1_temp
String nwnname2 = "SMPS_APS_>N50_h_W"
String nwnname2_temp
String nwnname3 = "SMPS_APS_>N50_h_S"
String nwnname3_temp
String nwnname4 = "SMPS_APS_>N50matrix_h_WS"
String nwnname4_temp
String nwnname5 = "SMPS_APS_>N50matrix_h_W"
String nwnname5_temp
String nwnname6 = "SMPS_APS_>N50matrix_h_S"
String nwnname6_temp

    nwnname1_temp = nwnname1+num2str(i)
    nwnname2_temp = nwnname2+num2str(i)
    nwnname3_temp = nwnname3+num2str(i)
    nwnname4_temp = nwnname4+num2str(i)
    nwnname5_temp = nwnname5+num2str(i)
    nwnname6_temp = nwnname6+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nwnname1_temp
Wave nfullname2 = $nwnname2_temp
Wave nfullname3 = $nwnname3_temp
Wave nfullname4 = $nwnname4_temp
Wave nfullname5 = $nwnname5_temp
Wave nfullname6 = $nwnname6_temp

    duplicate/o $wname1_temp, $nwnname1_temp
    duplicate/o $wname2_temp, $nwnname2_temp
    duplicate/o $wname3_temp, $nwnname3_temp

    redimension/n=-1 $nwnname1_temp
    redimension/n=-1 $nwnname2_temp
    redimension/n=-1 $nwnname3_temp

    duplicate/o/r=(22, 85) $wname1_temp, $nwnname4_temp
    duplicate/o/r=(22, 85) $wname2_temp, $nwnname5_temp
    duplicate/o/r=(22, 85) $wname3_temp, $nwnname6_temp

    matrixop/o nfullname1 = sumRows(nfullname4)
    matrixop/o nfullname2 = sumRows(nfullname5)
    matrixop/o nfullname3 = sumRows(nfullname6)

    killwaves nfullname4, nfullname5, nfullname6

Endfor

End

Function SMPS OPC_N100 () // Calculate the integrated number concentrations of >100 nm particles for each event
// ** ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ** **
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

```

```

Variable i

String wname1 = "SMPS_OPC_Nmatrix_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "SMPS_OPC_Nmatrix_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "SMPS_OPC_Nmatrix_h_S"
String wname3_temp

For (i=17; i<19; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)

    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname1 = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

String nwname1 = "SMPS_OPC_>N100_h_WS"
String nwname1_temp
String nwname2 = "SMPS_OPC_>N100_h_W"
String nwname2_temp
String nwname3 = "SMPS_OPC_>N100_h_S"
String nwname3_temp

    nwname1_temp = nwname1+num2str(i)
    nwname2_temp = nwname2+num2str(i)
    nwname3_temp = nwname3+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nwname1_temp
Wave nfullname2 = $nwname2_temp
Wave nfullname3 = $nwname3_temp

    duplicate/o $wname1_temp, $nwname1_temp
    duplicate/o $wname2_temp, $nwname2_temp
    duplicate/o $wname3_temp, $nwname3_temp

    redimension/n=-1 $nwname1_temp
    redimension/n=-1 $nwname2_temp
    redimension/n=-1 $nwname3_temp

nfullname1 = fullname1[p][32] + fullname1[p][33] + fullname1[p][34] + fullname1[p][35] + fullname1[p][36] + fullname1[p][37] +
fullname1[p][38] + fullname1[p][39] + fullname1[p][40] + fullname1[p][41] + fullname1[p][42] + fullname1[p][43] + fullname1[p][44] +
fullname1[p][45] + fullname1[p][46] + fullname1[p][47] + fullname1[p][48] + fullname1[p][49] + fullname1[p][50] + fullname1[p][51]
nfullname2 = fullname2[p][32] + fullname2[p][33] + fullname2[p][34] + fullname2[p][35] + fullname2[p][36] + fullname2[p][37] +
fullname2[p][38] + fullname2[p][39] + fullname2[p][40] + fullname2[p][41] + fullname2[p][42] + fullname2[p][43] + fullname2[p][44] +
fullname2[p][45] + fullname2[p][46] + fullname2[p][47] + fullname2[p][48] + fullname2[p][49] + fullname2[p][50] + fullname2[p][51]
nfullname3 = fullname3[p][32] + fullname3[p][33] + fullname3[p][34] + fullname3[p][35] + fullname3[p][36] + fullname3[p][37] +
fullname3[p][38] + fullname3[p][39] + fullname3[p][40] + fullname3[p][41] + fullname3[p][42] + fullname3[p][43] + fullname3[p][44] +
fullname3[p][45] + fullname3[p][46] + fullname3[p][47] + fullname3[p][48] + fullname3[p][49] + fullname3[p][50] + fullname3[p][51]

Endfor

End

Function SMPS_APS_N100 () // Calculate the integrated number concentrations of >100 nm particles for each event

// ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED **
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Variable i

String wname1 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_S"
String wname3_temp

For (i=19; i<20; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)

    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)

```



```

Wave fullname1 = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

String nwname1 = "SMPS_APS_>N100_h_WS"
String nwname1_temp
String nwname2 = "SMPS_APS_>N100_h_W"
String nwname2_temp
String nwname3 = "SMPS_APS_>N100_h_S"
String nwname3_temp
String nwname4 = "SMPS_APS_>N100matrix_h_WS"
String nwname4_temp
String nwname5 = "SMPS_APS_>N100matrix_h_W"
String nwname5_temp
String nwname6 = "SMPS_APS_>N100matrix_h_S"
String nwname6_temp

nwname1_temp = nwname1+num2str(i)
nwname2_temp = nwname2+num2str(i)
nwname3_temp = nwname3+num2str(i)
nwname4_temp = nwname4+num2str(i)
nwname5_temp = nwname5+num2str(i)
nwname6_temp = nwname6+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nwname1_temp
Wave nfullname2 = $nwname2_temp
Wave nfullname3 = $nwname3_temp
Wave nfullname4 = $nwname4_temp
Wave nfullname5 = $nwname5_temp
Wave nfullname6 = $nwname6_temp

duplicate/o $wname1_temp, $nwname1_temp
duplicate/o $wname2_temp, $nwname2_temp
duplicate/o $wname3_temp, $nwname3_temp

redimension/n=-1 $nwname1_temp
redimension/n=-1 $nwname2_temp
redimension/n=-1 $nwname3_temp

duplicate/o/r=()(32, 85) $wname1_temp, $nwname4_temp
duplicate/o/r=()(32, 85) $wname2_temp, $nwname5_temp
duplicate/o/r=()(32, 85) $wname3_temp, $nwname6_temp

matrixop/o nfullname1 = sumRows(nfullname4)
matrixop/o nfullname2 = sumRows(nfullname5)
matrixop/o nfullname3 = sumRows(nfullname6)

killwaves nfullname4, nfullname5, nfullname6

Endfor

End

Function SMPS_OPC_N200 () // Calculate the integrated number concentrations of >200 nm particles for each event
// *** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ***
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Variable i

String wname1 = "SMPS_OPC_Nmatrix_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "SMPS_OPC_Nmatrix_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "SMPS_OPC_Nmatrix_h_S"
String wname3_temp

For (i=17; i<19; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<_+1)

wname1_temp = wname1+num2str(i)
wname2_temp = wname2+num2str(i)
wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname1 = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

```

```

String nwname1 = "SMPS_OPC_>N200_h_WS"
String nwname1_temp
String nwname2 = "SMPS_OPC_>N200_h_W"
String nwname2_temp
String nwname3 = "SMPS_OPC_>N200_h_S"
String nwname3_temp

nwname1_temp = nwname1+num2str(i)
nwname2_temp = nwname2+num2str(i)
nwname3_temp = nwname3+num2str(i)

Wave fullname1 = $nwname1_temp
Wave fullname2 = $nwname2_temp
Wave fullname3 = $nwname3_temp

duplicate/o $wname1_temp, $nwname1_temp
duplicate/o $wname2_temp, $nwname2_temp
duplicate/o $wname3_temp, $nwname3_temp

redimension/n=-1 $nwname1_temp
redimension/n=-1 $nwname2_temp
redimension/n=-1 $nwname3_temp

nfullname1 = fullname1[p][42] + fullname1[p][43] + fullname1[p][44] + fullname1[p][45] + fullname1[p][46] + fullname1[p][47] +
fullname1[p][48] + fullname1[p][49] + fullname1[p][50] + fullname1[p][51]
nfullname2 = fullname2[p][42] + fullname2[p][43] + fullname2[p][44] + fullname2[p][45] + fullname2[p][46] + fullname2[p][47] +
fullname2[p][48] + fullname2[p][49] + fullname2[p][50] + fullname2[p][51]
nfullname3 = fullname3[p][42] + fullname3[p][43] + fullname3[p][44] + fullname3[p][45] + fullname3[p][46] + fullname3[p][47] +
fullname3[p][48] + fullname3[p][49] + fullname3[p][50] + fullname3[p][51]

Endfor

End

Function SMPS_APS_N200 () // Calculate the integrated number concentrations of >200 nm particles for each event

// ** ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ** **
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Variable i

String wname1 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_S"
String wname3_temp

For (i=19; i<20; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)

wname1_temp = wname1+num2str(i)
wname2_temp = wname2+num2str(i)
wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname1 = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

String nwname1 = "SMPS_APS_>N200_h_WS"
String nwname1_temp
String nwname2 = "SMPS_APS_>N200_h_W"
String nwname2_temp
String nwname3 = "SMPS_APS_>N200_h_S"
String nwname3_temp
String nwname4 = "SMPS_APS_>N200matrix_h_WS"
String nwname4_temp
String nwname5 = "SMPS_APS_>N200matrix_h_W"
String nwname5_temp
String nwname6 = "SMPS_APS_>N200matrix_h_S"
String nwname6_temp

```

```

nwname1_temp = nwname1+num2str(i)
nwname2_temp = nwname2+num2str(i)
nwname3_temp = nwname3+num2str(i)
nwname4_temp = nwname4+num2str(i)
nwname5_temp = nwname5+num2str(i)
nwname6_temp = nwname6+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nwname1_temp
Wave nfullname2 = $nwname2_temp
Wave nfullname3 = $nwname3_temp
Wave nfullname4 = $nwname4_temp
Wave nfullname5 = $nwname5_temp
Wave nfullname6 = $nwname6_temp

duplicate/o $wname1_temp, $nwname1_temp
duplicate/o $wname2_temp, $nwname2_temp
duplicate/o $wname3_temp, $nwname3_temp

redimension/n=-1 $nwname1_temp
redimension/n=-1 $nwname2_temp
redimension/n=-1 $nwname3_temp

duplicate/o/r=()(42, 85) $wname1_temp, $nwname4_temp
duplicate/o/r=()(42, 85) $wname2_temp, $nwname5_temp
duplicate/o/r=()(42, 85) $wname3_temp, $nwname6_temp

matrixop/o nfullname1 = sumRows(nfullname4)
matrixop/o nfullname2 = sumRows(nfullname5)
matrixop/o nfullname3 = sumRows(nfullname6)

killwaves nfullname4, nfullname5, nfullname6

Endfor

End

Function SMPS_OPC_N300 () // Calculate the integrated number concentrations of >300 nm particles for each event
// *** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ***
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Variable i

String wname1 = "SMPS_OPC_Nmatrix_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "SMPS_OPC_Nmatrix_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "SMPS_OPC_Nmatrix_h_S"
String wname3_temp

For (i=17; i<19; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)

wname1_temp = wname1+num2str(i)
wname2_temp = wname2+num2str(i)
wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname1 = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

String nwname1 = "SMPS_OPC_>N300_h_WS"
String nwname1_temp
String nwname2 = "SMPS_OPC_>N300_h_W"
String nwname2_temp
String nwname3 = "SMPS_OPC_>N300_h_S"
String nwname3_temp

nwname1_temp = nwname1+num2str(i)
nwname2_temp = nwname2+num2str(i)
nwname3_temp = nwname3+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nwname1_temp
Wave nfullname2 = $nwname2_temp
Wave nfullname3 = $nwname3_temp

duplicate/o $wname1_temp, $nwname1_temp
duplicate/o $wname2_temp, $nwname2_temp
duplicate/o $wname3_temp, $nwname3_temp

```

```

redimension/n=-1 $wname1_temp
redimension/n=-1 $wname2_temp
redimension/n=-1 $wname3_temp

nfullname1 = fullname1[p][48] + fullname1[p][49] + fullname1[p][50] + fullname1[p][51]
nfullname2 = fullname2[p][48] + fullname2[p][49] + fullname2[p][50] + fullname2[p][51]
nfullname3 = fullname3[p][48] + fullname3[p][49] + fullname3[p][50] + fullname3[p][51]

Endfor

End

Function SMPS_APS_N300 () // Calculate the integrated number concentrations of >300 nm particles for each event

// ** ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ** **
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Variable i

String wname1 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_S"
String wname3_temp

For (i=19; i<20; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<_+1)

wname1_temp = wname1+num2str(i)
wname2_temp = wname2+num2str(i)
wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname1 = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

String nwname1 = "SMPS_APS_>N300_h_WS"
String nwname1_temp
String nwname2 = "SMPS_APS_>N300_h_W"
String nwname2_temp
String nwname3 = "SMPS_APS_>N300_h_S"
String nwname3_temp
String nwname4 = "SMPS_APS_>N300matrix_h_WS"
String nwname4_temp
String nwname5 = "SMPS_APS_>N300matrix_h_W"
String nwname5_temp
String nwname6 = "SMPS_APS_>N300matrix_h_S"
String nwname6_temp

nwname1_temp = nwname1+num2str(i)
nwname2_temp = nwname2+num2str(i)
nwname3_temp = nwname3+num2str(i)
nwname4_temp = nwname4+num2str(i)
nwname5_temp = nwname5+num2str(i)
nwname6_temp = nwname6+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nwname1_temp
Wave nfullname2 = $nwname2_temp
Wave nfullname3 = $nwname3_temp
Wave nfullname4 = $nwname4_temp
Wave nfullname5 = $nwname5_temp
Wave nfullname6 = $nwname6_temp

duplicate/o $wname1_temp, $nwname1_temp
duplicate/o $wname2_temp, $nwname2_temp
duplicate/o $wname3_temp, $nwname3_temp

redimension/n=-1 $nwname1_temp
redimension/n=-1 $nwname2_temp
redimension/n=-1 $nwname3_temp

duplicate/o/r=(48, 85) $wname1_temp, $nwname4_temp
duplicate/o/r=(48, 85) $wname2_temp, $nwname5_temp
duplicate/o/r=(48, 85) $wname3_temp, $nwname6_temp

```

```

matrixop/o nfullname1 = sumRows(nfullname4)
matrixop/o nfullname2 = sumRows(nfullname5)
matrixop/o nfullname3 = sumRows(nfullname6)

killwaves nfullname4, nfullname5, nfullname6

Endfor

End

Function SMPS_OPC_N500 () // Calculate the integrated number concentrations of >500 nm particles for each event
// *** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ***
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Variable i

String wname1 = "SMPS_OPC_Nmatrix_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "SMPS_OPC_Nmatrix_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "SMPS_OPC_Nmatrix_h_S"
String wname3_temp

For (i=17; i<19; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)

wname1_temp = wname1+num2str(i)
wname2_temp = wname2+num2str(i)
wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname1 = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

String nwname1 = "SMPS_OPC_>N500_h_WS"
String nwname1_temp
String nwname2 = "SMPS_OPC_>N500_h_W"
String nwname2_temp
String nwname3 = "SMPS_OPC_>N500_h_S"
String nwname3_temp

nwname1_temp = nwname1+num2str(i)
nwname2_temp = nwname2+num2str(i)
nwname3_temp = nwname3+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nwname1_temp
Wave nfullname2 = $nwname2_temp
Wave nfullname3 = $nwname3_temp

duplicate/o $wname1_temp, $nwname1_temp
duplicate/o $wname2_temp, $nwname2_temp
duplicate/o $wname3_temp, $nwname3_temp

redimension/n=-1 $nwname1_temp
redimension/n=-1 $nwname2_temp
redimension/n=-1 $nwname3_temp

nfullname1 = fullname1[p][49] + fullname1[p][50] + fullname1[p][51]
nfullname2 = fullname2[p][49] + fullname2[p][50] + fullname2[p][51]
nfullname3 = fullname3[p][49] + fullname3[p][50] + fullname3[p][51]

Endfor

End

Function SMPS_APS_N500 () // Calculate the integrated number concentrations of >500 nm particles for each event
// *** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ***
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Variable i

String wname1 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_S"
String wname3_temp

```

```

For (i=19; i<20; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)

    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname1 = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

String nwname1 = "SMPS_APS_>N500_h_WS"
String nwname1_temp
String nwname2 = "SMPS_APS_>N500_h_W"
String nwname2_temp
String nwname3 = "SMPS_APS_>N500_h_S"
String nwname3_temp
String nwname4 = "SMPS_APS_>N500matrix_h_WS"
String nwname4_temp
String nwname5 = "SMPS_APS_>N500matrix_h_W"
String nwname5_temp
String nwname6 = "SMPS_APS_>N500matrix_h_S"
String nwname6_temp

    nwname1_temp = nwname1+num2str(i)
    nwname2_temp = nwname2+num2str(i)
    nwname3_temp = nwname3+num2str(i)
    nwname4_temp = nwname4+num2str(i)
    nwname5_temp = nwname5+num2str(i)
    nwname6_temp = nwname6+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nwname1_temp
Wave nfullname2 = $nwname2_temp
Wave nfullname3 = $nwname3_temp
Wave nfullname4 = $nwname4_temp
Wave nfullname5 = $nwname5_temp
Wave nfullname6 = $nwname6_temp

    duplicate/o $wname1_temp, $nwname1_temp
    duplicate/o $wname2_temp, $nwname2_temp
    duplicate/o $wname3_temp, $nwname3_temp

    redimension/n=-1 $nwname1_temp
    redimension/n=-1 $nwname2_temp
    redimension/n=-1 $nwname3_temp

    duplicate/o/r=()(54, 85) $wname1_temp, $nwname4_temp
    duplicate/o/r=()(54, 85) $wname2_temp, $nwname5_temp
    duplicate/o/r=()(54, 85) $wname3_temp, $nwname6_temp

    matrixop/o nfullname1 = sumRows(nfullname4)
    matrixop/o nfullname2 = sumRows(nfullname5)
    matrixop/o nfullname3 = sumRows(nfullname6)

    killwaves nfullname4, nfullname5, nfullname6

Endfor

End

Function SMPS OPC_Ntotal () // Calculate the total integrated number concentrations for each event
// *** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION ***

Variable i

String wname1 = "SMPS OPC_Nmatrix_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "SMPS OPC_Nmatrix_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "SMPS OPC_Nmatrix_h_S"
String wname3_temp

For (i=17; i<19; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)

```

```

wname1_temp = wname1+num2str(i)
wname2_temp = wname2+num2str(i)
wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname1 = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

String nwname1 = "SMPS_OPC_Ntotal_h_WS"
String nwname1_temp
String nwname2 = "SMPS_OPC_Ntotal_h_W"
String nwname2_temp
String nwname3 = "SMPS_OPC_Ntotal_h_S"
String nwname3_temp

nwname1_temp = nwname1+num2str(i)
nwname2_temp = nwname2+num2str(i)
nwname3_temp = nwname3+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nwname1_temp
Wave nfullname2 = $nwname2_temp
Wave nfullname3 = $nwname3_temp

duplicate/o $wname1_temp, $nwname1_temp
duplicate/o $wname2_temp, $nwname2_temp
duplicate/o $wname3_temp, $nwname3_temp

redimension/n=-1 $nwname1_temp
redimension/n=-1 $nwname2_temp
redimension/n=-1 $nwname3_temp

matrixop/o nfullname1 = sumRows(fullname1)
matrixop/o nfullname2 = sumRows(fullname2)
matrixop/o nfullname3 = sumRows(fullname3)

Endfor

End

Function SMPS_APS_Ntotal () // Calculate the total integrated number concentrations for each event
// ** ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION ** **

Variable i

String wname1 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "SMPS_APS_Nmatrix_h_S"
String wname3_temp

For (i=19; i<20; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)

```

```

wname1_temp = wname1+num2str(i)
wname2_temp = wname2+num2str(i)
wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname1 = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

String nwname1 = "SMPS_APS_Ntotal_h_WS"
String nwname1_temp
String nwname2 = "SMPS_APS_Ntotal_h_W"
String nwname2_temp
String nwname3 = "SMPS_APS_Ntotal_h_S"
String nwname3_temp

nwname1_temp = nwname1+num2str(i)
nwname2_temp = nwname2+num2str(i)
nwname3_temp = nwname3+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nwname1_temp
Wave nfullname2 = $nwname2_temp
Wave nfullname3 = $nwname3_temp

duplicate/o $wname1_temp, $nwname1_temp
duplicate/o $wname2_temp, $nwname2_temp
duplicate/o $wname3_temp, $nwname3_temp

redimension/n=-1 $nwname1_temp
redimension/n=-1 $nwname2_temp
redimension/n=-1 $nwname3_temp

matrixop/o nfullname1 = sumRows(fullname1)
matrixop/o nfullname2 = sumRows(fullname2)
matrixop/o nfullname3 = sumRows(fullname3)

Endfor

End

Function Concatenate_SMPS_OPC_APS_N50 () // Concatenate SMPS, OPC, and APS number integrated concentrations of >50 nm particles
// for each season

String SMPS_OPC_APS_Nconc_list = ""

Variable i=0

Do
WAVE/Z w=WaveRefIndexedDFR(:,i)

If (WaveExists(w) == 0)
Break
Endif

If (stringmatch(nameofwave(w),"SMPS_*_>N50_h_WS")) // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
SMPS_OPC_APS_Nconc_list += nameofwave(w) + ";"
Endif
i += 1

While(1)

Print SMPS_OPC_APS_Nconc_list
Concatenate/NP=0/O SMPS_OPC_APS_Nconc_list, SMPS_OPC_APS_N50_h_WS1719 // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)

End

```



```

Function Concatenate_SMPS_OPC_APS_N100 () // Concatenate SMPS, OPC, and APS number integrated concentrations of >100 nm particles
// for each season

String SMPS_OPC_APS_Nconc_list = ""

Variable i=0

Do
    WAVE/Z w=WaveRefIndexedDFR(:,i)

    If (WaveExists(w) == 0)
        Break
    Endif

    If (stringmatch(nameofwave(w),"SMPS_*_>N100_h_WS*")) // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
        SMPS_OPC_APS_Nconc_list += nameofwave(w) + ";"
    Endif
    i += 1

While(1)

Print SMPS_OPC_APS_Nconc_list
Concatenate/NP=0/O SMPS_OPC_APS_Nconc_list, SMPS_OPC_APS_N100_h_WS1719 // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)

End

Function Concatenate_SMPS_OPC_APS_N200 () // Concatenate SMPS, OPC, and APS number integrated concentrations of >200 nm particles
// for each season

String SMPS_OPC_APS_Nconc_list = ""

Variable i=0

Do
    WAVE/Z w=WaveRefIndexedDFR(:,i)

    If (WaveExists(w) == 0)
        Break
    Endif

    If (stringmatch(nameofwave(w),"SMPS_*_>N200_h_WS*")) // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
        SMPS_OPC_APS_Nconc_list += nameofwave(w) + ";"
    Endif
    i += 1

While(1)

Print SMPS_OPC_APS_Nconc_list
Concatenate/NP=0/O SMPS_OPC_APS_Nconc_list, SMPS_OPC_APS_N200_h_WS1719 // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)

End

Function Concatenate_SMPS_OPC_APS_N300 () // Concatenate SMPS, OPC, and APS number integrated concentrations of >300 nm particles
// for each season

String SMPS_OPC_APS_Nconc_list = ""

Variable i=0

Do
    WAVE/Z w=WaveRefIndexedDFR(:,i)

    If (WaveExists(w) == 0)
        Break
    Endif

    If (stringmatch(nameofwave(w),"SMPS_*_>N300_h_WS*")) // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
        SMPS_OPC_APS_Nconc_list += nameofwave(w) + ";"
    Endif
    i += 1

While(1)

Print SMPS_OPC_APS_Nconc_list
Concatenate/NP=0/O SMPS_OPC_APS_Nconc_list, SMPS_OPC_APS_N300_h_WS1719 // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)

End

```

```

Function Concatenate_SMPS_OPC_APS_N500 () // Concatenate SMPS, OPC, and APS number integrated concentrations of >500 nm particles
// for each season

String SMPS_OPC_APS_Nconc_list = ""
Variable i=0
Do
    WAVE/Z w=WaveRefIndexedDFR(:,i)

    If (WaveExists(w) == 0)
        Break
    Endif

    If (stringmatch(nameofwave(w),"SMPS_*_>N500_h_WS**")) // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
        SMPS_OPC_APS_Nconc_list += nameofwave(w) + ";"
    Endif
    i += 1

While(1)

Print SMPS_OPC_APS_Nconc_list
Concatenate/NP=0/O SMPS_OPC_APS_Nconc_list, SMPS_OPC_APS_N500_h_WS1719 // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
End

Function Concatenate_SMPS_OPC_APS_Ntotal () // Concatenate SMPS, OPC, and APS total integrated number concentrations for each season

String SMPS_OPC_APS_Nconc_list = ""
Variable i=0
Do
    WAVE/Z w=WaveRefIndexedDFR(:,i)

    If (WaveExists(w) == 0)
        Break
    Endif

    If (stringmatch(nameofwave(w),"SMPS_*_Ntotal_h_WS**")) // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
        SMPS_OPC_APS_Nconc_list += nameofwave(w) + ";"
    Endif
    i += 1

While(1)

Print SMPS_OPC_APS_Nconc_list
Concatenate/NP=0/O SMPS_OPC_APS_Nconc_list, SMPS_OPC_APS_Ntotal_h_WS1719 // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
End

Function Concatenate_PAX870_bsca () // Concatenate scattering coefficients at wavelength of 870 nm for each season

String PAX870_bsca_list = ""
Variable i=0
Do
    WAVE/Z w=WaveRefIndexedDFR(:,i)

    If (WaveExists(w) == 0)
        Break
    Endif

    If (stringmatch(nameofwave(w),"PAX870_bsca_h_WS**")) // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
        PAX870_bsca_list += nameofwave(w) + ";"
    Endif
    i += 1

While(1)

Print PAX870_bsca_list
Concatenate/NP=0/O PAX870_bsca_list, PAX870_bsca_h_WS1719 // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
End

```

```

Function Concatenate_PAX405_bsca () // Concatenate scattering coefficients at wavelength of 405 nm for each season
String PAX405_bsca_list = ""
Variable i=0
Do
    WAVE/Z w=WaveRefrIndexDFR(:,i)
    If (WaveExists(w) == 0)
        Break
    Endif
    If (stringmatch(nameofwave(w),"PAX405_bsca_h_WS*")) // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
        PAX405_bsca_list += nameofwave(w) + ",";
    Endif
    i += 1
While(1)
Print PAX405_bsca_list
Concatenate/NP=0/O PAX405_bsca_list, PAX405_bsca_h_WS1719 // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
End

```

```

Function Concatenate_PAX870_babs () // Concatenate absorption coefficients at wavelength of 870 nm for each season
String PAX870_babs_list = ""
Variable i=0
Do
    WAVE/Z w=WaveRefrIndexDFR(:,i)
    If (WaveExists(w) == 0)
        Break
    Endif
    If (stringmatch(nameofwave(w),"PAX870_babs_h_WS*")) // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
        PAX870_babs_list += nameofwave(w) + ",";
    Endif
    i += 1
While(1)
Print PAX870_babs_list
Concatenate/NP=0/O PAX870_babs_list, PAX870_babs_h_WS1719 // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
End

```

```

Function Concatenate_PAX405_babs () // Concatenate absorption coefficients at wavelength of 405 nm for each season
String PAX405_babs_list = ""
Variable i=0
Do
    WAVE/Z w=WaveRefrIndexDFR(:,i)
    If (WaveExists(w) == 0)
        Break
    Endif
    If (stringmatch(nameofwave(w),"PAX405_babs_h_WS*")) // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
        PAX405_babs_list += nameofwave(w) + ",";
    Endif
    i += 1
While(1)
Print PAX405_babs_list
Concatenate/NP=0/O PAX405_babs_list, PAX405_babs_h_WS1719 // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
End

```

```

Function Concatenate_PAX870_datetime () // Concatenate date and time waves at wavelength of 870 nm for each season
String PAX870_datetime_list = ""
Variable i=0
Do
    WAVE/Z w=WaveRefIndexedDFR(:,i)
    If (WaveExists(w) == 0)
        Break
    Endif
    If (stringmatch(nameofwave(w),"PAX870_datetime_end_WS*")) // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
        PAX870_datetime_list += nameofwave(w) + ","
    Endif
    i += 1
While(1)
Print PAX870_datetime_list
Concatenate/NP=0/O PAX870_datetime_list, PAX870_datetime_end_WS1719 // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
End

```

```

Function Concatenate_PAX405_datetime () // Concatenate date and time waves at wavelength of 405 nm for each season
String PAX405_datetime_list = ""
Variable i=0
Do
    WAVE/Z w=WaveRefIndexedDFR(:,i)
    If (WaveExists(w) == 0)
        Break
    Endif
    If (stringmatch(nameofwave(w),"PAX405_datetime_end_WS*")) // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
        PAX405_datetime_list += nameofwave(w) + ","
    Endif
    i += 1
While(1)
Print PAX405_datetime_list
Concatenate/NP=0/O PAX405_datetime_list, PAX405_datetime_end_WS1719 // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
End

```

## V. Distribution mensuelle en nombre des aérosols mesurés par le SMPS

La distribution des concentrations médianes en nombre sur un intervalle de taille donné est construite pour chaque mois de 2016 à 2019 à partir d'une série de fonctions développées en partie par l'auteur de cet ouvrage en utilisant le logiciel Igor Pro. Les distributions mensuelles en taille pour chaque année ont d'abord été créées manuellement en se servant uniquement des données horaires provenant du SMPS. Il s'ensuit d'un jumelage de ces distributions en taille selon le mois par le biais de la fonction *Concatenate\_SMPS\_Nmatrix ()* qui est décrite ci-dessous. Les 20<sup>e</sup>, 50<sup>e</sup> et 80<sup>e</sup> percentiles de la distribution mensuelle en taille ont finalement été calculés avec une procédure d'Igor Pro *Percentile and Box Plot.ipf*.

```
// Calculate the mean number size distributions from the Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) for particle sizes between 10 and 487 nm and
// for each month from different years
// Average the integrated number concentration for each month from different years
```

```
// Pay close attention to the units of your inputs. If you use other units, your outputs may not make sense.
```

```
    // Number concentrations are expressed as #/cm^3
    // Particle diameters are always nanometers (nm)
```

```
// Make sure all the SMPS waves are written as follows
```

```
    // "SMPS_Nmatrix_h_##_M#"
    // "SMPS_Nintegrated_h_##_M#"
    // "SMPS_datetime_end_##_M#"
    // "SMPS_dlogDp"
    // where '#' indicate a number (e.g. month or year)
```

```
Function Concatenate_SMPS_Nmatrix () // Concatenate SMPS number size distribution from different years for each month
```

```
String SMPS_Nmatrix_list = ""
```

```
Variable i=0
```

```
Do
```

```
    WAVE/Z w=WaveRefIndexedDFR(:,i)
```

```
    If (WaveExists(w) == 0)
```

```
        Break
```

```
    Endif
```

```
    If (stringmatch(nameofwave(w),"SMPS_Nmatrix_h_*_M12")) // Change month label if necessary (i.e. _M1 for January)
        SMPS_Nmatrix_list += nameofwave(w) + ";"
```

```
    Endif
```

```
    i += 1
```

```
While(1)
```

```
Print SMPS_Nmatrix_list
```

```
Concatenate/NP=0/O SMPS_Nmatrix_list, SMPS_Nmatrix_h_1619_M12 // Change month label if necessary (i.e. _M1 for January)
```

```
End
```

```
Function SMPS_MeanSizeDistribution () // Calculate the mean number distributions from different years for each month
```

```
// *** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ***
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"
```

```
Variable i
```

```
Variable j
```

```
String wname1 = "SMPS_Nmatrix_h_1619_M" // Change the year if necessary (e.g. "SMPS_Nmatrix_h_##_M")
String wname1_temp
```

```
For (i=1; i<13; i+=1) // Change the number of months if necessary (e.g. i<_+1)
```

```
    wname1_temp = wname1+num2str(i)
```

```
Wave fullname1 = $wname1_temp
```

```
String nname1 = "SMPS_Nmatrix_avg_h_1619_M" // Change the year if necessary (e.g. "SMPS_Nmatrix_h_##_M")
```

```
String nname2 = "SMPS_Nmatrix_sdev_h_1619_M" // Change the year if necessary (e.g. "SMPS_Nmatrix_h_##_M")
```

```
String nname3 = "SMPS_Nmatrix_sem_h_1619_M" // Change the year if necessary (e.g. "SMPS_Nmatrix_h_##_M")
```

```
String nname1_temp
```

```
String nname2_temp
```

```
String nname3_temp
```

```

nwname1_temp = nwname1+num2str(i)
nwname2_temp = nwname2+num2str(i)
nwname3_temp = nwname3+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nwname1_temp
Wave nfullname2 = $nwname2_temp
Wave nfullname3 = $nwname3_temp

duplicate/o $wname1_temp, $nwname1_temp
duplicate/o $wname1_temp, $nwname2_temp
duplicate/o $wname1_temp, $nwname3_temp
redimension/N=54 $nwname1_temp
redimension/N=54 $nwname2_temp
redimension/N=54 $nwname3_temp
make/o/d/n=(dimsize($wname1_temp, 0)) wname_temp

For (j=0; j<54; j+=1)

    matrixop/o wname_temp = col(fullname1, j)
    wavestats/q wname_temp
    nfullname1[j] = v_avg
    nfullname2[j] = v_sdev
    nfullname3[j] = v_sem

Endfor

killwaves wname_temp

End

```

## VI. Statistiques sur les propriétés des aérosols

Les calculs statistiques sur les propriétés optiques et la concentration en nombre des aérosols réalisés dans le cadre de ce projet de recherche comprennent la moyenne arithmétique, l'écart-type, la médiane, le 5<sup>e</sup> percentile, le 25<sup>e</sup> percentile, le 75<sup>e</sup> percentile et enfin le 95<sup>e</sup> percentile. Tous les calculs ont été effectués sur le logiciel d'analyse de données Igor Pro. On entend par « propriétés optiques », les propriétés telles que  $B_{sca}$ ,  $B_{abs}$ , SSA et SAE aux longueurs d'onde de 405 et 870 nm. L'indice de réfraction et le AAE ont été exclus des calculs. L'analyse statistique couvre uniquement l'ensemble des données horaires enregistrées durant l'hiver et le printemps de 2016 à 2019. Les fonctions qui ont servies à calculer les moyennes et les écart-types pour les paramètres optiques sont décrites dans la procédure *PAX\_SSA+AAE+SAE\_seasonal.ipf*, tandis que celles pour la concentration se trouve dans la procédure intitulée *SMPS OPC APS TotalConc\_seasonal.ipf*. Les statistiques sur les percentiles ont été calculés à l'aide de la procédure d'Igor Pro *Percentile and Box Plot.ipf*.



## *PAX\_SSA+AAE+SAE\_seasonal.ipf*

```
// Average of the single scattering albedo (SSA) at wavelengths of 405 nm and 870 nm for each season
// Average of the absorption (AAE) and scattering (SAE) Angström exponents for each season
// Compute aerosol optical properties for each season
// Winter and spring only
// Make sure all the PAX waves are witten as follows
```

```
// Single scattering albedo (SSA) calculation:
```

```
// "PAX###_datetime_end_WS#"
// "PAX###_bsca_h_WS#"
// "PAX###_babs_h_WS#"
// "PAX###_datetime_end_W#"
// "PAX###_bsca_h_W#"
// "PAX###_babs_h_W#"
// "PAX###_datetime_end_S#"
// "PAX###_bsca_h_S#"
// "PAX###_babs_h_S#"
// where '#' indicate a number (e.g. wavelength or number of years)
```

```
// Absorption (AAE) and scattering (SAE) Angström exponents calculation:
```

```
// "PAX###_datetime_end_AE_WS#"
// "PAX###_bsca_h_AE_WS#"
// "PAX###_babs_h_AE_WS#"
// "PAX###_datetime_end_AE_W#"
// "PAX###_bsca_h_AE_W#"
// "PAX###_babs_h_AE_W#"
// "PAX###_datetime_end_AE_S#"
// "PAX###_bsca_h_AE_S#"
// "PAX###_babs_h_AE_S#"
// where '#' indicate a number (e.g. wavelength or number of years)
```

```
Function Opt_Calc () // Initiate all optical properties calculation
```

```
SSA_PAX405_Calc ()
SSA_PAX870_Calc ()
AAE_Calc ()
SAE_Calc ()
```

```
End
```

```
Function SSA_PAX405_Calc () // Calculate the average single scattering albedo (SSA) at wavelength of 405 nm for each season
```

```
Variable i
Variable j
```

```
String wname1_1 = "PAX405_datetime_end_WS"
String wname2_1 = "PAX405_bsca_h_WS"
String wname3_1 = "PAX405_babs_h_WS"
String wname1_2 = "PAX405_datetime_end_W"
String wname2_2 = "PAX405_bsca_h_W"
String wname3_2 = "PAX405_babs_h_W"
String wname1_3 = "PAX405_datetime_end_S"
String wname2_3 = "PAX405_bsca_h_S"
String wname3_3 = "PAX405_babs_h_S"
```

```
String wname1_1_temp
String wname2_1_temp
String wname3_1_temp
String wname1_2_temp
String wname2_2_temp
String wname3_2_temp
String wname1_3_temp
String wname2_3_temp
String wname3_3_temp
```

```
For (i=1719; i<1720; i+=1) // Change the year of the season if necessary (e.g. i<__)
```

```

wname1_1_temp = wname1_1+num2str(i)
wname2_1_temp = wname2_1+num2str(i)
wname3_1_temp = wname3_1+num2str(i)
wname1_2_temp = wname1_2+num2str(i)
wname2_2_temp = wname2_2+num2str(i)
wname3_2_temp = wname3_2+num2str(i)
wname1_3_temp = wname1_3+num2str(i)
wname2_3_temp = wname2_3+num2str(i)
wname3_3_temp = wname3_3+num2str(i)

Wave fullname1_1 = $wname1_1_temp
Wave fullname2_1 = $wname2_1_temp
Wave fullname3_1 = $wname3_1_temp
Wave fullname1_2 = $wname1_2_temp
Wave fullname2_2 = $wname2_2_temp
Wave fullname3_2 = $wname3_2_temp
Wave fullname1_3 = $wname1_3_temp
Wave fullname2_3 = $wname2_3_temp
Wave fullname3_3 = $wname3_3_temp

make/o/d/n = (numpts($wname1_1_temp)) SSA_1
make/o/d/n = (numpts($wname1_2_temp)) SSA_2
make/o/d/n = (numpts($wname1_3_temp)) SSA_3

For (j=0; j<numpts($wname1_1_temp); j+=1)

    SSA_1[j] = fullname2_1[j] / (fullname2_1[j] + fullname3_1[j])

Endfor

For (j=0; j<numpts($wname1_2_temp); j+=1)

    SSA_2[j] = fullname2_2[j] / (fullname2_2[j] + fullname3_2[j])

Endfor

For (j=0; j<numpts($wname1_3_temp); j+=1)

    SSA_3[j] = fullname2_3[j] / (fullname2_3[j] + fullname3_3[j])

Endfor

    // Change the number of years if necessary (e.g. n=__+1)
make/o/d/n=1720 SSA_avg_405_WS, SSA_sdev_405_WS, SSA_sem_405_WS
    // Change the number of years if necessary (e.g. n=__+1)
make/o/d/n=1720 SSA_avg_405_W, SSA_sdev_405_W, SSA_sem_405_W
    // Change the number of years if necessary (e.g. n=__+1)
make/o/d/n=1720 SSA_avg_405_S, SSA_sdev_405_S, SSA_sem_405_S

wvstats/Q SSA_1
    SSA_avg_405_WS[i] = v_avg // Average of SSA values
    SSA_sdev_405_WS[i] = v_sdev // Standard deviation of SSA values
    SSA_sem_405_WS[i] = v_sem // Standard error of the SSA mean

wvstats/Q SSA_2
    SSA_avg_405_W[i] = v_avg
    SSA_sdev_405_W[i] = v_sdev
    SSA_sem_405_W[i] = v_sem

wvstats/Q SSA_3
    SSA_avg_405_S[i] = v_avg
    SSA_sdev_405_S[i] = v_sdev
    SSA_sem_405_S[i] = v_sem

Endfor

killwaves SSA_1, SSA_2, SSA_3

End

Function SSA_PAX870_Calc () // Calculate the average single scattering albedo (SSA) at wavelength of 870 nm for each season
    Variable i
    Variable j

```

```

String wname1_1 = "PAX870_datetime_end_WS"
String wname2_1 = "PAX870_bsca_h_WS"
String wname3_1 = "PAX870_babs_h_WS"
String wname1_2 = "PAX870_datetime_end_W"
String wname2_2 = "PAX870_bsca_h_W"
String wname3_2 = "PAX870_babs_h_W"
String wname1_3 = "PAX870_datetime_end_S"
String wname2_3 = "PAX870_bsca_h_S"
String wname3_3 = "PAX870_babs_h_S"

String wname1_1_temp
String wname2_1_temp
String wname3_1_temp
String wname1_2_temp
String wname2_2_temp
String wname3_2_temp
String wname1_3_temp
String wname2_3_temp
String wname3_3_temp

For (i=1719; i<1720; i+=1) // Change the year of the season if necessary (e.g. i<_)

    wname1_1_temp = wname1_1+num2str(i)
    wname2_1_temp = wname2_1+num2str(i)
    wname3_1_temp = wname3_1+num2str(i)
    wname1_2_temp = wname1_2+num2str(i)
    wname2_2_temp = wname2_2+num2str(i)
    wname3_2_temp = wname3_2+num2str(i)
    wname1_3_temp = wname1_3+num2str(i)
    wname2_3_temp = wname2_3+num2str(i)
    wname3_3_temp = wname3_3+num2str(i)

Wave fullname1_1 = $wname1_1_temp
Wave fullname2_1 = $wname2_1_temp
Wave fullname3_1 = $wname3_1_temp
Wave fullname1_2 = $wname1_2_temp
Wave fullname2_2 = $wname2_2_temp
Wave fullname3_2 = $wname3_2_temp
Wave fullname1_3 = $wname1_3_temp
Wave fullname2_3 = $wname2_3_temp
Wave fullname3_3 = $wname3_3_temp

    make/o/d/n = (numpts($wname1_1_temp)) SSA_1
    make/o/d/n = (numpts($wname1_2_temp)) SSA_2
    make/o/d/n = (numpts($wname1_3_temp)) SSA_3

For (j=0; j<numpts($wname1_1_temp); j+=1)

    SSA_1[j] = fullname2_1[j] / (fullname2_1[j] + fullname3_1[j])

Endfor

For (j=0; j<numpts($wname1_2_temp); j+=1)

    SSA_2[j] = fullname2_2[j] / (fullname2_2[j] + fullname3_2[j])

Endfor

For (j=0; j<numpts($wname1_3_temp); j+=1)

    SSA_3[j] = fullname2_3[j] / (fullname2_3[j] + fullname3_3[j])

Endfor

    // Change the number of years if necessary (e.g. n=__+1)
make/o/d/n=1720 SSA_avg_870_WS, SSA_sdev_870_WS, SSA_sem_870_WS
    // Change the number of years if necessary (e.g. n=__+1)
make/o/d/n=1720 SSA_avg_870_W, SSA_sdev_870_W, SSA_sem_870_W
    // Change the number of years if necessary (e.g. n=__+1)
make/o/d/n=1720 SSA_avg_870_S, SSA_sdev_870_S, SSA_sem_870_S

```

```

wavestats/Q SSA_1
  SSA_avg_870_WS[i] = v_avg // Average of SSA values
  SSA_sdev_870_WS[i] = v_sdev // Standard deviation of SSA values
  SSA_sem_870_WS[i] = v_sem // Standard error of the SSA mean

wavestats/Q SSA_2
  SSA_avg_870_W[i] = v_avg
  SSA_sdev_870_W[i] = v_sdev
  SSA_sem_870_W[i] = v_sem

wavestats/Q SSA_3
  SSA_avg_870_S[i] = v_avg
  SSA_sdev_870_S[i] = v_sdev
  SSA_sem_870_S[i] = v_sem

Endfor

killwaves SSA_1, SSA_2, SSA_3

End

Function AAE_Calc () // Calculate the average absorption Angström exponent (AAE) for each season
  Variable i
  Variable j

  String wname1_1 = "PAX405_datetime_end_AE_WS"
  String wname2_1 = "PAX405_babs_h_AE_WS"
  String wname3_1 = "PAX870_babs_h_AE_WS"
  String wname1_2 = "PAX405_datetime_end_AE_W"
  String wname2_2 = "PAX405_babs_h_AE_W"
  String wname3_2 = "PAX870_babs_h_AE_W"
  String wname1_3 = "PAX405_datetime_end_AE_S"
  String wname2_3 = "PAX405_babs_h_AE_S"
  String wname3_3 = "PAX870_babs_h_AE_S"

  String wname1_1_temp
  String wname2_1_temp
  String wname3_1_temp
  String wname1_2_temp
  String wname2_2_temp
  String wname3_2_temp
  String wname1_3_temp
  String wname2_3_temp
  String wname3_3_temp

  For (i=17; i<20; i+=1) // Change the year of the season if necessary (e.g. i<__ )

    wname2_1_temp = wname2_1+num2str(i)
    wname3_1_temp = wname3_1+num2str(i)
    wname1_2_temp = wname1_2+num2str(i)
    wname2_2_temp = wname2_2+num2str(i)
    wname3_2_temp = wname3_2+num2str(i)
    wname1_3_temp = wname1_3+num2str(i)
    wname2_3_temp = wname2_3+num2str(i)
    wname3_3_temp = wname3_3+num2str(i)

    Wave fullname1_1 = $wname1_1_temp
    Wave fullname2_1 = $wname2_1_temp
    Wave fullname3_1 = $wname3_1_temp
    Wave fullname1_2 = $wname1_2_temp
    Wave fullname2_2 = $wname2_2_temp
    Wave fullname3_2 = $wname3_2_temp
    Wave fullname1_3 = $wname1_3_temp
    Wave fullname2_3 = $wname2_3_temp
    Wave fullname3_3 = $wname3_3_temp

    make/o/d/n = (numpts($wname1_1_temp)) AAE_1
    make/o/d/n = (numpts($wname1_2_temp)) AAE_2
    make/o/d/n = (numpts($wname1_3_temp)) AAE_3

  For (j=0; j<numpts($wname1_1_temp); j+=1)

    AAE_1[j] = - (ln(fullname3_1[j]) - ln(fullname2_1[j])) / (ln(870) - ln(405))

```

```

Endfor

For (j=0; j<numpts($wname1_2_temp); j+=1)

    AAE_2[j] = - (ln(fullname3_2[j]) - ln(fullname2_2[j])) / (ln(870) - ln(405))

Endfor

For (j=0; j<numpts($wname1_3_temp); j+=1)

    AAE_3[j] = - (ln(fullname3_3[j]) - ln(fullname2_3[j])) / (ln(870) - ln(405))

Endfor

make/o/d/n=1720 AAE_avg_WS, AAE_sdev_WS, AAE_sem_WS // Change the number of years if necessary (e.g. n=__+1)
make/o/d/n=1720 AAE_avg_W, AAE_sdev_W, AAE_sem_W // Change the number of years if necessary (e.g. n=__+1)
make/o/d/n=1720 AAE_avg_S, AAE_sdev_S, AAE_sem_S // Change the number of years if necessary (e.g. n=__+1)

wavestats/Q AAE_1
    AAE_avg_WS[j] = v_avg // Average of SSA values
    AAE_sdev_WS[j] = v_sdev // Standard deviation of SSA values
    AAE_sem_WS[j] = v_sem // Standard error of the SSA mean

wavestats/Q AAE_2
    AAE_avg_W[j] = v_avg
    AAE_sdev_W[j] = v_sdev
    AAE_sem_W[j] = v_sem

wavestats/Q AAE_3
    AAE_avg_S[j] = v_avg
    AAE_sdev_S[j] = v_sdev
    AAE_sem_S[j] = v_sem

Endfor

killwaves AAE_1, AAE_2, AAE_3

End

Function SAE_Calc () // Calculate the average scattering Angström exponent (SAE) for each season

Variable i
Variable j

String wname1_1 = "PAX405_datetime_end_AE_WS"
String wname2_1 = "PAX405_bsca_h_AE_WS"
String wname3_1 = "PAX870_bsca_h_AE_WS"
String wname1_2 = "PAX405_datetime_end_AE_W"
String wname2_2 = "PAX405_bsca_h_AE_W"
String wname3_2 = "PAX870_bsca_h_AE_W"
String wname1_3 = "PAX405_datetime_end_AE_S"
String wname2_3 = "PAX405_bsca_h_AE_S"
String wname3_3 = "PAX870_bsca_h_AE_S"

String wname1_1_temp
String wname2_1_temp
String wname3_1_temp
String wname1_2_temp
String wname2_2_temp
String wname3_2_temp
String wname1_3_temp
String wname2_3_temp
String wname3_3_temp

For (i=1719; i<1720; i+=1) // Change the year of the season if necessary (e.g. i<__)

```

```

wname2_1_temp = wname2_1+num2str(i)
wname3_1_temp = wname3_1+num2str(i)
wname1_2_temp = wname1_2+num2str(i)
wname2_2_temp = wname2_2+num2str(i)
wname3_2_temp = wname3_2+num2str(i)
wname1_3_temp = wname1_3+num2str(i)
wname2_3_temp = wname2_3+num2str(i)
wname3_3_temp = wname3_3+num2str(i)

Wave fullname1_1 = $wname1_1_temp
Wave fullname2_1 = $wname2_1_temp
Wave fullname3_1 = $wname3_1_temp
Wave fullname1_2 = $wname1_2_temp
Wave fullname2_2 = $wname2_2_temp
Wave fullname3_2 = $wname3_2_temp
Wave fullname1_3 = $wname1_3_temp
Wave fullname2_3 = $wname2_3_temp
Wave fullname3_3 = $wname3_3_temp

make/o/d/n = (numpts($wname1_1_temp)) SAE_1
make/o/d/n = (numpts($wname1_2_temp)) SAE_2
make/o/d/n = (numpts($wname1_3_temp)) SAE_3

For (j=0; j<numpts($wname1_1_temp); j+=1)

    SAE_1[j] = - (ln(fullname3_1[j]) - ln(fullname2_1[j])) / (ln(870) - ln(405))

Endfor

For (j=0; j<numpts($wname1_2_temp); j+=1)

    SAE_2[j] = - (ln(fullname3_2[j]) - ln(fullname2_2[j])) / (ln(870) - ln(405))

Endfor

For (j=0; j<numpts($wname1_3_temp); j+=1)

    SAE_3[j] = - (ln(fullname3_3[j]) - ln(fullname2_3[j])) / (ln(870) - ln(405))

Endfor

make/o/d/n=1720 SAE_avg_WS, SAE_sdev_WS, SAE_sem_WS // Change the number of years if necessary (e.g. n=__+1)
make/o/d/n=1720 SAE_avg_W, SAE_sdev_W, SAE_sem_W // Change the number of years if necessary (e.g. n=__+1)
make/o/d/n=1720 SAE_avg_S, SAE_sdev_S, SAE_sem_S // Change the number of years if necessary (e.g. n=__+1)

wavestats/Q SAE_1
    SAE_avg_WS[i] = v_avg // Average of SSA values
    SAE_sdev_WS[i] = v_sdev // Standard deviation of SSA values
    SAE_sem_WS[i] = v_sem // Standard error of the SSA mean

wavestats/Q SAE_2
    SAE_avg_W[i] = v_avg
    SAE_sdev_W[i] = v_sdev
    SAE_sem_W[i] = v_sem

wavestats/Q SAE_2
    SAE_avg_S[i] = v_avg
    SAE_sdev_S[i] = v_sdev
    SAE_sem_S[i] = v_sem

Endfor

killwaves SAE_1, SAE_2, SAE_3

End

```

## *SMPS OPC APS TotalConc\_seasonal.ipf*

```
// Convert the matrix of normalized number concentration (dN/dlogDp) data from the SMPS, OPC, and APS into
// a matrix of number concentration (dN) data for each season
// Convert number concentration (dN) data from the SMPS, OPC, and APS into mass concentration (dM) data for each season
// Calculate integrated number and mass concentrations from the SMPS size distribution for season
// Calculate integrated number and mass concentrations from the OPC size distribution for season
// Calculate integrated number and mass concentrations from the APS size distribution for season
// Calculate integrated number and mass concentrations from the combined SMPS and OPC size distributions for season
// Calculate integrated number and mass concentrations from the combined SMPS and APS size distributions for season

// Pay close attention to the units of your inputs. If you use other units, your outputs may not make sense.

// Number concentrations are expressed as #/cm^3
// Mass concentrations are expressed as ug/cm^3
// Surface area concentrations are expressed as nm^2/cm^3
// Particle diameters are always in nanometers (nm)

// Make sure all the SMPS waves are witten as follows
// "SMPS_Nmatrix_dlogDp_h_WS#"
// "SMPS_Nmatrix_dlogDp_h_W#"
// "SMPS_Nmatrix_dlogDp_h_S#"
// "SMPS_dlogDp"
// "smps_diameter"
// "OPC_Nmatrix_dlogDp_h_WS#"
// "OPC_Nmatrix_dlogDp_h_W#"
// "OPC_Nmatrix_dlogDp_h_S#"
// "OPC_dlogDp"
// "OPC_diameter"
// "APS_Nmatrix_dlogDp_h_WS#"
// "APS_Nmatrix_dlogDp_h_W#"
// "APS_Nmatrix_dlogDp_h_S#"
// "APS_dlogDp"
// "APS_diameter"
// where '#' indicate a number (e.g. year)

Function SMPS_dNlogDpTodN () // Convert dN/dlogDp to dN concentration matrix from SMPS

// ** ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ** **
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Wave smps_dlogDp
Variable i
Variable j
Variable k

String wname1 = "smps_Nmatrix_dlogDp_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "smps_Nmatrix_dlogDp_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "smps_Nmatrix_dlogDp_h_S"
String wname3_temp

For (i=17; i<20; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)

    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname1 = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp
```

```

String nwname1 = "SMPS_Nmatrix_h_WS"
String nwname1_temp
String nwname2 = "SMPS_Nmatrix_h_W"
String nwname2_temp
String nwname3 = "SMPS_Nmatrix_h_S"
String nwname3_temp

nwname1_temp = nwname1+num2str(i)
nwname2_temp = nwname2+num2str(i)
nwname3_temp = nwname3+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nwname1_temp
Wave nfullname2 = $nwname2_temp
Wave nfullname3 = $nwname3_temp

duplicate/o $wname1_temp, $nwname1_temp
duplicate/o $wname2_temp, $nwname2_temp
duplicate/o $wname3_temp, $nwname3_temp

For (j=0; j<dimsize(fullname1, 0); j+=1)
  For (k=0; k<dimsize(fullname1, 1); k+=1)

    nfullname1[j][k] = fullname1[j][k]*smps_dlogDp[k]

  Endfor
Endfor
For (j=0; j<dimsize(fullname2, 0); j+=1)
  For (k=0; k<dimsize(fullname2, 1); k+=1)

    nfullname2[j][k] = fullname2[j][k]*smps_dlogDp[k]

  Endfor
Endfor
For (j=0; j<dimsize(fullname3, 0); j+=1)
  For (k=0; k<dimsize(fullname3, 1); k+=1)

    nfullname3[j][k] = fullname3[j][k]*smps_dlogDp[k]

  Endfor
Endfor

Endfor

End

Function APS_dNlogDpToDN () // Convert dN/dlogDp to dN concentration matrix from APS
// *** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ***
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Wave APS_dlogDp
Variable i
Variable j
Variable k

String wname1 = "APS_Nmatrix_dlogDp_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "APS_Nmatrix_dlogDp_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "APS_Nmatrix_dlogDp_h_S"
String wname3_temp

For (i=19; i<20; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)

  wname1_temp = wname1+num2str(i)
  wname2_temp = wname2+num2str(i)
  wname3_temp = wname3+num2str(i)

  Wave fullname1 = $wname1_temp
  Wave fullname2 = $wname2_temp
  Wave fullname3 = $wname3_temp

```



```

String nwname1 = "APS_Nmatrix_h_WS"
String nwname1_temp
String nwname2 = "APS_Nmatrix_h_W"
String nwname2_temp
String nwname3 = "APS_Nmatrix_h_S"
String nwname3_temp

    nwname1_temp = nwname1+num2str(i)
    nwname2_temp = nwname2+num2str(i)
    nwname3_temp = nwname3+num2str(i)

Wave fullname1 = $nwname1_temp
Wave fullname2 = $nwname2_temp
Wave fullname3 = $nwname3_temp

duplicate/o $wname1_temp, $nwname1_temp
duplicate/o $wname2_temp, $nwname2_temp
duplicate/o $wname3_temp, $nwname3_temp

For (j=0; j<dimsize(fullname1, 0); j+=1)
    For (k=0; k<dimsize(fullname1, 1); k+=1)

        fullname1[j][k] = fullname1[j][k]*APS_dlogDp[k]

    Endfor
Endfor
For (j=0; j<dimsize(fullname2, 0); j+=1)
    For (k=0; k<dimsize(fullname2, 1); k+=1)

        fullname2[j][k] = fullname2[j][k]*APS_dlogDp[k]

    Endfor
Endfor
For (j=0; j<dimsize(fullname3, 0); j+=1)
    For (k=0; k<dimsize(fullname3, 1); k+=1)

        fullname3[j][k] = fullname3[j][k]*APS_dlogDp[k]

    Endfor
Endfor

Endfor

End

Function OPC_dNdlogDpTodN () // Convert dN/dlogDp to dN concentration matrix from OPC
// ** ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ** **
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Wave OPC_dlogDp
Variable i
Variable j
Variable k

String wname1 = "OPC_matrix_dlogDp_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "OPC_matrix_dlogDp_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "OPC_matrix_dlogDp_h_S"
String wname3_temp

For (i=17; i<19; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)

    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname1 = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

```

```

String nwname1 = "OPC_Nmatrix_h_WS"
String nwname1_temp
String nwname2 = "OPC_Nmatrix_h_W"
String nwname2_temp
String nwname3 = "OPC_Nmatrix_h_S"
String nwname3_temp

nwname1_temp = nwname1+num2str(i)
nwname2_temp = nwname2+num2str(i)
nwname3_temp = nwname3+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nwname1_temp
Wave nfullname2 = $nwname2_temp
Wave nfullname3 = $nwname3_temp

duplicate/o $wname1_temp, $nwname1_temp
duplicate/o $wname2_temp, $nwname2_temp
duplicate/o $wname3_temp, $nwname3_temp

For (j=0; j<dimsize(fullname1, 0); j+=1)
  For (k=0; k<dimsize(fullname1, 1); k+=1)

    nfullname1[j][k] = fullname1[j][k]*OPC_dlogDp[k]

  Endfor
Endfor
For (j=0; j<dimsize(fullname2, 0); j+=1)
  For (k=0; k<dimsize(fullname2, 1); k+=1)

    nfullname2[j][k] = fullname2[j][k]*OPC_dlogDp[k]

  Endfor
Endfor
For (j=0; j<dimsize(fullname3, 0); j+=1)
  For (k=0; k<dimsize(fullname3, 1); k+=1)

    nfullname3[j][k] = fullname3[j][k]*OPC_dlogDp[k]

  Endfor
Endfor

Endfor

End
Function SMPS_Nintegrated () // Calculate the total integrated number concentrations from SMPS for each season
// *** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ***
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Variable i

String wname1 = "SMPS_Nmatrix_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "SMPS_Nmatrix_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "SMPS_Nmatrix_h_S"
String wname3_temp

For (i=17; i<20; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)

  wname1_temp = wname1+num2str(i)
  wname2_temp = wname2+num2str(i)
  wname3_temp = wname3+num2str(i)

  Wave fullname1 = $wname1_temp
  Wave fullname2 = $wname2_temp
  Wave fullname3 = $wname3_temp

```

```

String nwname1 = "SMPS_Nconc_h_WS"
String nwname1_temp
String nwname2 = "SMPS_Nconc_h_W"
String nwname2_temp
String nwname3 = "SMPS_Nconc_h_S"
String nwname3_temp

nwname1_temp = nwname1+num2str(i)
nwname2_temp = nwname2+num2str(i)
nwname3_temp = nwname3+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nwname1_temp
Wave nfullname2 = $nwname2_temp
Wave nfullname3 = $nwname3_temp

duplicate/o $wname1_temp, $nwname1_temp
duplicate/o $wname2_temp, $nwname2_temp
duplicate/o $wname3_temp, $nwname3_temp

redimension/n=-1 $nwname1_temp
redimension/n=-1 $nwname2_temp
redimension/n=-1 $nwname3_temp

matrixop/o nfullname1 = sumRows(fullname1)
matrixop/o nfullname2 = sumRows(fullname2)
matrixop/o nfullname3 = sumRows(fullname3)
Endfor

End

Function OPC_Nintegrated () // Calculate the integrated number concentrations in a specific size range from OPC for each season
// ** ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ** **
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Variable i

String wname1 = "OPC_Nmatrix_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "OPC_Nmatrix_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "OPC_Nmatrix_h_S"
String wname3_temp

For (i=17; i<19; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)

wname1_temp = wname1+num2str(i)
wname2_temp = wname2+num2str(i)
wname3_temp = wname3+num2str(i)
Wave fullname1 = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

String nwname1 = "OPC_Nconc_h_WS"
String nwname1_temp
String nwname2 = "OPC_Nconc_h_W"
String nwname2_temp
String nwname3 = "OPC_Nconc_h_S"
String nwname3_temp

nwname1_temp = nwname1+num2str(i)
nwname2_temp = nwname2+num2str(i)
nwname3_temp = nwname3+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nwname1_temp
Wave nfullname2 = $nwname2_temp
Wave nfullname3 = $nwname3_temp

duplicate/o $wname1_temp, $nwname1_temp
duplicate/o $wname2_temp, $nwname2_temp
duplicate/o $wname3_temp, $nwname3_temp

redimension/n=-1 $nwname1_temp
redimension/n=-1 $nwname2_temp
redimension/n=-1 $nwname3_temp

```

```

nfullname1 = fullname1[p][1] + fullname1[p][2] + fullname1[p][3]
nfullname2 = fullname2[p][1] + fullname2[p][2] + fullname2[p][3]
nfullname3 = fullname3[p][1] + fullname3[p][2] + fullname3[p][3]

Endfor

End

Function APS_Nintegrated () // Calculate the integrated number concentrations in a specific size range from APS for each season
// ** ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ** **
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"

Variable i

String wname1 = "APS_Nmatrix_h_WS"
String wname1_temp
String wname2 = "APS_Nmatrix_h_W"
String wname2_temp
String wname3 = "APS_Nmatrix_h_S"
String wname3_temp

For (i=19; i<20; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)
    wname1_temp = wname1+num2str(i)
    wname2_temp = wname2+num2str(i)
    wname3_temp = wname3+num2str(i)

Wave fullname1 = $wname1_temp
Wave fullname2 = $wname2_temp
Wave fullname3 = $wname3_temp

String nwname1 = "APS_Nconc_h_WS"
String nwname1_temp
String nwname2 = "APS_Nconc_h_W"
String nwname2_temp
String nwname3 = "APS_Nconc_h_S"
String nwname3_temp

    nwname1_temp = nwname1+num2str(i)
    nwname2_temp = nwname2+num2str(i)
    nwname3_temp = nwname3+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nwname1_temp
Wave nfullname2 = $nwname2_temp
Wave nfullname3 = $nwname3_temp

duplicate/o $wname1_temp, $nwname1_temp
duplicate/o $wname2_temp, $nwname2_temp
duplicate/o $wname3_temp, $nwname3_temp
redimension/n=-1 $nwname1_temp
redimension/n=-1 $nwname2_temp
redimension/n=-1 $nwname3_temp

nfullname1 = fullname1[p][0] + fullname1[p][1] + fullname1[p][2] + fullname1[p][3] + fullname1[p][4] + fullname1[p][5] + fullname1[p][6] +
fullname1[p][7] + fullname1[p][8] + fullname1[p][9] + fullname1[p][10] + fullname1[p][11] + fullname1[p][12] + fullname1[p][13] +
fullname1[p][14] + fullname1[p][15] + fullname1[p][16] + fullname1[p][17] + fullname1[p][18] + fullname1[p][19] + fullname1[p][20] +
fullname1[p][21] + fullname1[p][22] + fullname1[p][23] + fullname1[p][24] + fullname1[p][25] + fullname1[p][26] + fullname1[p][17] +
fullname1[p][28] + fullname1[p][29] + fullname1[p][30] + fullname1[p][31]
nfullname2 = fullname2[p][0] + fullname2[p][1] + fullname2[p][2] + fullname2[p][3] + fullname2[p][4] + fullname2[p][5] + fullname2[p][6] +
fullname2[p][7] + fullname2[p][8] + fullname2[p][9] + fullname2[p][10] + fullname2[p][11] + fullname2[p][12] + fullname2[p][13] +
fullname2[p][14] + fullname2[p][15] + fullname2[p][16] + fullname2[p][17] + fullname2[p][18] + fullname2[p][19] + fullname2[p][20] +
fullname2[p][21] + fullname2[p][22] + fullname2[p][23] + fullname2[p][24] + fullname2[p][25] + fullname2[p][26] + fullname2[p][17] +
fullname2[p][28] + fullname2[p][29] + fullname2[p][30] + fullname2[p][31]
nfullname3 = fullname3[p][0] + fullname3[p][1] + fullname3[p][2] + fullname3[p][3] + fullname3[p][4] + fullname3[p][5] + fullname3[p][6] +
fullname3[p][7] + fullname3[p][8] + fullname3[p][9] + fullname3[p][10] + fullname3[p][11] + fullname3[p][12] + fullname3[p][13] +
fullname3[p][14] + fullname3[p][15] + fullname3[p][16] + fullname3[p][17] + fullname3[p][18] + fullname3[p][19] + fullname3[p][20] +
fullname3[p][21] + fullname3[p][22] + fullname3[p][23] + fullname3[p][24] + fullname3[p][25] + fullname3[p][26] + fullname3[p][17] +
fullname3[p][28] + fullname3[p][29] + fullname3[p][30] + fullname3[p][31]

Endfor

End

```

```
Function SMPS_OPC_Nintegrated () // Sum the integrated number concentrations from the SMPS and OPC for each season
```

```
// ** ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ** **  
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"
```

```
Variable i
```

```
String wname1_1 = "SMPS_Nconc_h_WS"  
String wname1_1_temp  
String wname2_1 = "SMPS_Nconc_h_W"  
String wname2_1_temp  
String wname3_1 = "SMPS_Nconc_h_S"  
String wname3_1_temp  
String wname1_2 = "OPC_Nconc_h_WS"  
String wname1_2_temp  
String wname2_2 = "OPC_Nconc_h_W"  
String wname2_2_temp  
String wname3_2 = "OPC_Nconc_h_S"  
String wname3_2_temp
```

```
For (i=17; i<19; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)
```

```
wname1_1_temp = wname1_1+num2str(i)  
wname2_1_temp = wname2_1+num2str(i)  
wname3_1_temp = wname3_1+num2str(i)  
wname1_2_temp = wname1_2+num2str(i)  
wname2_2_temp = wname2_2+num2str(i)  
wname3_2_temp = wname3_2+num2str(i)
```

```
Wave fullname1_1 = $wname1_1_temp  
Wave fullname2_1 = $wname2_1_temp  
Wave fullname3_1 = $wname3_1_temp  
Wave fullname1_2 = $wname1_2_temp  
Wave fullname2_2 = $wname2_2_temp  
Wave fullname3_2 = $wname3_2_temp
```

```
String nwnname1 = "SMPS_OPC_Nconc_h_WS"  
String nwnname1_temp  
String nwnname2 = "SMPS_OPC_Nconc_h_W"  
String nwnname2_temp  
String nwnname3 = "SMPS_OPC_Nconc_h_S"  
String nwnname3_temp
```

```
nwnname1_temp = nwnname1+num2str(i)  
nwnname2_temp = nwnname2+num2str(i)  
nwnname3_temp = nwnname3+num2str(i)
```

```
Wave nfullname1 = $nwnname1_temp  
Wave nfullname2 = $nwnname2_temp  
Wave nfullname3 = $nwnname3_temp
```

```
duplicate/o $wname1_1_temp, $nwnname1_temp  
duplicate/o $wname2_1_temp, $nwnname2_temp  
duplicate/o $wname3_1_temp, $nwnname3_temp
```

```
nfullname1 = fullname1_1 + fullname1_2  
nfullname2 = fullname2_1 + fullname2_2  
nfullname3 = fullname3_1 + fullname3_2
```

```
Endfor
```

```
End
```

```
Function SMPS_APS_Nintegrated () // Sum the integrated number concentrations from the SMPS and APS for each season
```

```
// ** ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ** **  
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"
```

```
Variable i
```

```

String wname1_1 = "SMPS_Nconc_h_WS"
String wname1_1_temp
String wname2_1 = "SMPS_Nconc_h_W"
String wname2_1_temp
String wname3_1 = "SMPS_Nconc_h_S"
String wname3_1_temp
String wname1_2 = "APS_Nconc_h_WS"
String wname1_2_temp
String wname2_2 = "APS_Nconc_h_W"
String wname2_2_temp
String wname3_2 = "APS_Nconc_h_S"
String wname3_2_temp

For (i=19; i<20; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)

    wname1_1_temp = wname1_1+num2str(i)
    wname2_1_temp = wname2_1+num2str(i)
    wname3_1_temp = wname3_1+num2str(i)
    wname1_2_temp = wname1_2+num2str(i)
    wname2_2_temp = wname2_2+num2str(i)
    wname3_2_temp = wname3_2+num2str(i)

Wave fullname1_1 = $wname1_1_temp
Wave fullname2_1 = $wname2_1_temp
Wave fullname3_1 = $wname3_1_temp
Wave fullname1_2 = $wname1_2_temp
Wave fullname2_2 = $wname2_2_temp
Wave fullname3_2 = $wname3_2_temp

String nwnname1 = "SMPS_APS_Nconc_h_WS"
String nwnname1_temp
String nwnname2 = "SMPS_APS_Nconc_h_W"
String nwnname2_temp
String nwnname3 = "SMPS_APS_Nconc_h_S"
String nwnname3_temp

    nwnname1_temp = nwnname1+num2str(i)
    nwnname2_temp = nwnname2+num2str(i)
    nwnname3_temp = nwnname3+num2str(i)

Wave nfullname1 = $nwnname1_temp
Wave nfullname2 = $nwnname2_temp
Wave nfullname3 = $nwnname3_temp

    duplicate/o $wname1_1_temp, $nwnname1_temp
    duplicate/o $wname2_1_temp, $nwnname2_temp
    duplicate/o $wname3_1_temp, $nwnname3_temp
    nfullname1 = fullname1_1 + nfullname1_2
    nfullname2 = fullname2_1 + nfullname2_2
    nfullname3 = fullname3_1 + nfullname3_2

Endfor

End

Function Concatenate_SMPS_OPC_APS_Nconc () // Concatenate SMPS, OPC, and APS number integrated concentrations for each season

String SMPS_OPC_APS_Nconc_list = ""

Variable i=0

Do
    WAVE/Z w=WaveRefIndexedDFR(:,i)

    If (WaveExists(w) == 0)
        Break
    Endif

    If (stringmatch(nameofwave(w),"SMPS_*_Nconc_h_WS*") // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
        SMPS_OPC_APS_Nconc_list += nameofwave(w) + ";"
    Endif
    i += 1

While(1)

Print SMPS_OPC_APS_Nconc_list // Change season label if necessary (i.e. _W for winter)
Concatenate/NP=0/O SMPS_OPC_APS_Nconc_list, SMPS_OPC_APS_Nconc_h_WS1719

End

```

```
Function SMPS_OPC_Average_N () // Calculate the mean, the standard deviation and the standard error of the mean of SMPS and
// OPC integrated number concentrations for each season
```

```
// *** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ***
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"
```

```
Variable i
```

```
String wname1_1 = "SMPS_OPC_Nconc_h_WS"
String wname1_1_temp
String wname2_1 = "SMPS_OPC_Nconc_h_W"
String wname2_1_temp
String wname3_1 = "SMPS_OPC_Nconc_h_S"
String wname3_1_temp
```

```
For (i=17; i<19; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)
```

```
wname1_1_temp = wname1_1+num2str(i)
wname2_1_temp = wname2_1+num2str(i)
wname3_1_temp = wname3_1+num2str(i)
```

```
Wave fullname1_1 = $wname1_1_temp
```

```
Wave fullname2_1 = $wname2_1_temp
```

```
Wave fullname3_1 = $wname3_1_temp
```

```
make/o/d/n=1720 Nconc_avg_WS, Nconc_sdev_WS, Nconc_sem_WS
```

```
make/o/d/n=1720 Nconc_avg_W, Nconc_sdev_W, Nconc_sem_W
```

```
make/o/d/n=1720 Nconc_avg_S, Nconc_sdev_S, Nconc_sem_S
```

```
wavestats/Q fullname1_1
```

```
Nconc_avg_WS[i] = v_avg // Average of total number concentration values
```

```
Nconc_sdev_WS[i] = v_sdev // Standard deviation of total number concentration values
```

```
Nconc_sem_WS[i] = v_sem // Standard error of the total number concentration mean
```

```
wavestats/Q fullname2_1
```

```
Nconc_avg_W[i] = v_avg
```

```
Nconc_sdev_W[i] = v_sdev
```

```
Nconc_sem_W[i] = v_sem
```

```
wavestats/Q fullname3_1
```

```
Nconc_avg_S[i] = v_avg
```

```
Nconc_sdev_S[i] = v_sdev
```

```
Nconc_sem_S[i] = v_sem
```

```
Endfor
```

```
End
```

```
Function SMPS_APS_Average_N () // Calculate the mean, the standard deviation and the standard error of the mean of SMPS and
// APS integrated number concentrations for each season
```

```
// *** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ***
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"
```

```
Wave Nconc_avg_WS, Nconc_sdev_WS, Nconc_sem_WS
```

```
Wave Nconc_avg_W, Nconc_sdev_W, Nconc_sem_W
```

```
Wave Nconc_avg_S, Nconc_sdev_S, Nconc_sem_S
```

```
Variable i
```

```
String wname1_2 = "SMPS_APS_Nconc_h_WS"
```

```
String wname1_2_temp
```

```
String wname2_2 = "SMPS_APS_Nconc_h_W"
```

```
String wname2_2_temp
```

```
String wname3_2 = "SMPS_APS_Nconc_h_S"
```

```
String wname3_2_temp
```

```
For (i=19; i<20; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)
```

```
wname1_2_temp = wname1_2+num2str(i)
```

```
wname2_2_temp = wname2_2+num2str(i)
```

```
wname3_2_temp = wname3_2+num2str(i)
```

```
Wave fullname1_2 = $wname1_2_temp
```

```
Wave fullname2_2 = $wname2_2_temp
```

```
Wave fullname3_2 = $wname3_2_temp
```

```

wavestats/Q fullname1_2
  Nconc_avg_WS[i] = v_avg
  Nconc_sdev_WS[i] = v_sdev
  Nconc_sem_WS[i] = v_sem

wavestats/Q fullname2_2
  Nconc_avg_W[i] = v_avg
  Nconc_sdev_W[i] = v_sdev
  Nconc_sem_W[i] = v_sem

wavestats/Q fullname3_2
  Nconc_avg_S[i] = v_avg
  Nconc_sdev_S[i] = v_sdev
  Nconc_sem_S[i] = v_sem

Endfor

End

Function SMPS_OPC_APS_Average_N () // Calculate the mean, the standard deviation and the standard error of the mean of SMPS, OPC, and
// APS integrated number concentrations for each season

// ** ** EXECUTE TWO TIMES THE FUNCTION IF THE FOLLOWING ERROR OCCURED ** **
// "Attempt to operate on a null (missing) wave"
Wave Nconc_avg_WS, Nconc_sdev_WS, Nconc_sem_WS
Wave Nconc_avg_W, Nconc_sdev_W, Nconc_sem_W
Wave Nconc_avg_S, Nconc_sdev_S, Nconc_sem_S

Variable i

String wname3_2_temp
String wname1_3 = "SMPS_OPC_APS_Nconc_h_WS"
String wname1_3_temp
String wname2_3 = "SMPS_OPC_APS_Nconc_h_W"
String wname2_3_temp
String wname3_3 = "SMPS_OPC_APS_Nconc_h_S"
String wname3_3_temp

For (i=1719; i<1720; i+=1) // Change the year if necessary (e.g. i<__+1)

  wname1_3_temp = wname1_3+num2str(i)
  wname2_3_temp = wname2_3+num2str(i)
  wname3_3_temp = wname3_3+num2str(i)

  Wave fullname1_3 = $wname1_3_temp
  Wave fullname2_3 = $wname2_3_temp
  Wave fullname3_3 = $wname3_3_temp
  wavestats/Q fullname1_3
    Nconc_avg_WS[i] = v_avg
    Nconc_sdev_WS[i] = v_sdev
    Nconc_sem_WS[i] = v_sem

  wavestats/Q fullname2_3
    Nconc_avg_W[i] = v_avg
    Nconc_sdev_W[i] = v_sdev
    Nconc_sem_W[i] = v_sem

  wavestats/Q fullname3_3
    Nconc_avg_S[i] = v_avg
    Nconc_sdev_S[i] = v_sdev
    Nconc_sem_S[i] = v_sem

Endfor

End

```



## **VII. Différence de température entre les stations PEARL et Eureka**

La différence de température moyenne entre le laboratoire PEARL et la station météorologique d'Eureka a été déterminée pour chaque épisode de brume arctique de 2016 à 2019. Les données météorologiques de la station d'Eureka ont été obtenues à partir du site Web de l'ECCC : [https://climate.weather.gc.ca/historical\\_data/search\\_historic\\_data\\_e.html](https://climate.weather.gc.ca/historical_data/search_historic_data_e.html). Les données météorologiques de PEARL pour la période désirée ont été fournies par CANDAC. Veuillez contacter le gestionnaire des données de CANDAC, Yan Tsehtik, pour accéder aux données du laboratoire PEARL : [yan.tsehtik@candac.ca](mailto:yan.tsehtik@candac.ca). La première procédure intitulée *LoadTempFiles\_WS1619.ipf* permet de télécharger les fichiers de données météorologiques dans le logiciel Igor Pro et d'extraire uniquement les données de température et de temps provenant des deux sites situés à une altitude distincte dans le Haut-Arctique. La seconde procédure (*Average\_Temp\_gradient\_WS1619.ipf*) procède à un calcul de la moyenne des températures mesurées pour chaque événement de brume arctique afin de déterminer ensuite la différence ou le gradient de température entre les deux sites.



```

columnInfoStr += "C=1,F=-1,N='_skip_',T=2;"
columnInfoStr += "C=1,F=-1,N='_skip_',T=2;"
columnInfoStr += "C=1,F=-1,N='_skip_',T=2;"
String message = "Select one or more files"
String outputPaths
String fileFilters = "Data Files (*.txt,*.dat,*.csv):.txt,.dat,.csv;"
fileFilters += "All Files.*;"

NewDataFolder/O/S root:EWS_data
Open /D /R /MULT=1 /F=fileFilters /M=message refNum
outputPaths = S_fileName

If (strlen(outputPaths) == 0)

    Print "Cancelled"

Else

    Variable numFilesSelected = ItemsInList(outputPaths, "\r")
    Variable i

    For(i=0; i<numFilesSelected; i+=1)

        String path = StringFromList(i, outputPaths, "\r")

        Printf "%d: %s\r", i, path
        LoadWave/A/B=columnInfoStr/D/J/K=1/L={0,1,0,4,6}/W path

        // Add commands here to load the actual waves. An example command
        // is included below but you will need to modify it depending on how
        // the data you are loading is organized.
        //LoadWave/A/D/J/W/K=0/V={" ", "$",0,0}/L={0,2,0,0,0} path

    Endfor

Endif

Return outputPaths // Will be empty if user canceled

End

Function/S LoadMultipleTempFiles_PWS () // Load multiple temperature data files from PWS in a folder named PWS_data

Variable refNum

String columnInfoStr = ""
columnInfoStr += "C=1,F=-2,N='PWS_DateTime',T=2;"
columnInfoStr += "C=1,F=0,N='PWS_Temp',T=2;"
columnInfoStr += "C=1,F=-1,N='_skip_',T=2;"
columnInfoStr += "C=1,F=-1,N='_skip_',T=2;"
columnInfoStr += "C=1,F=-1,N='_skip_',T=2;"
columnInfoStr += "C=1,F=-1,N='_skip_',T=2;"
columnInfoStr += "C=1,F=-1,N='_skip_',T=2;"
columnInfoStr += "C=1,F=-1,N='_skip_',T=2;"
columnInfoStr += "C=1,F=-1,N='_skip_',T=2;"
columnInfoStr += "C=1,F=-1,N='_skip_',T=2;"
columnInfoStr += "C=1,F=-1,N='_skip_',T=2;"
String message = "Select one or more files"
String outputPaths
String fileFilters = "Data Files (*.txt,*.dat,*.csv):.txt,.dat,.csv;"
fileFilters += "All Files.*;"

NewDataFolder/O/S root:PWS_data
Open /D /R /MULT=1 /F=fileFilters /M=message refNum
outputPaths = S_fileName

If (strlen(outputPaths) == 0)

    Print "Cancelled"

Else

```

```

Variable numFilesSelected = ItemsInList(outputPaths, "\r")
Variable i

For(i=0; i<numFilesSelected; i+=1)

    String path = StringFromList(i, outputPaths, "\r")

    Printf "%d: %s\r", i, path
    LoadWave/A/B=columnInfoStr/D/J/K=0/L={0,1,0,0,2}/W path

    // Add commands here to load the actual waves. An example command
    // is included below but you will need to modify it depending on how
    // the data you are loading is organized.
    //LoadWave/A/D/J/W/K=0/V={" ", "$",0,0}/L={0,2,0,0,0} path

Endfor

Endif

Return outputPaths // Will be empty if user canceled

End

Function Concatenate_EWS_datetime () // Concatenate all date and time data in EWS_data folder

String EWS_DateTime_list = ""
Variable i=0

SetDataFolder root:EWS_data

Do
    WAVE/Z w=WaveRefIndexedDFR(:,i)

    If (WaveExists(w) == 0)
        Break
    Endif

    If (stringmatch(nameofwave(w),"EWS_DateTime*"))
        EWS_DateTime_list += nameofwave(w) + ";"
    Endif
    i += 1

While(1)

Print EWS_DateTime_list
Concatenate/NP=0/O EWS_DateTime_list, EWS_DateTime_h_WS1619

End

Function Concatenate_EWS_temp () // Concatenate all temperature data in EWS_data folder

String EWS_Temp_list = ""
Variable i=0

SetDataFolder root:EWS_data

Do
    WAVE/Z w=WaveRefIndexedDFR(:,i)

    If (WaveExists(w) == 0)
        Break
    Endif

    If (stringmatch(nameofwave(w),"EWS_Temp*"))
        EWS_Temp_list += nameofwave(w) + ";"
    Endif
    i += 1

While(1)

Print EWS_Temp_list
Concatenate/NP=0/O EWS_Temp_list, EWS_Temp_h_WS1619

End

Function Concatenate_PWS_datetime () // Concatenate all date and time data in PWS_data folder

String PWS_DateTime_list = ""

```

```

Variable i=0
SetDataFolder root:PWS_data

Do
  WAVE/Z w=WaveRefIndexedDFR(:,i)

  If (WaveExists(w) == 0)
    Break
  Endif

  If (stringmatch(nameofwave(w),"PWS_DateTime*"))
    PWS_DateTime_list += nameofwave(w) + ";"
  Endif
  i += 1

While(1)

Print PWS_DateTime_list
Concatenate/NP=0/O PWS_DateTime_list, PWS_DateTime_WS1619

End

Function Concatenate_PWS_temp () // Concatenate all temperature data in PWS_data folder

String PWS_Temp_list = ""
Variable i=0

SetDataFolder root:PWS_data

Do
  WAVE/Z w=WaveRefIndexedDFR(:,i)

  If (WaveExists(w) == 0)
    Break
  Endif

  If (stringmatch(nameofwave(w),"PWS_Temp*"))
    PWS_Temp_list += nameofwave(w) + ";"
  Endif
  i += 1

While(1)

Print PWS_Temp_list
Concatenate/NP=0/O PWS_Temp_list, PWS_Temp_WS1619

End

Function WavesNewDestination () // Move temperature and time waves to a new data folder named Waves

NewDataFolder/O root:Waves
SetDataFolder root:
MoveWave :EWS_data:EWS_DateTime_h_WS1619, :Waves:
MoveWave :EWS_data:EWS_Temp_h_WS1619, :Waves:
MoveWave :PWS_data:PWS_DateTime_WS1619, :Waves:
MoveWave :PWS_data:PWS_Temp_WS1619, :Waves:

End

```

## *Average\_Temp\_gradient\_WS1619.ipf*

```
#pragma rtGlobals=3      // Use modern global access method and strict wave access.

// Average of temperature measured at Eureka (EWS) and PEARL RidgeLab (PWS) weather stations for each Arctic haze event
// Calculate temperature differences or temperature gradient between EWS and PWS for each Arctic haze event
// Name all Arctic haze events

// Make sure all the temperature waves are witten as follows:

    // "EWS_Temp_h_E#"
    // "PWS_Temp_E#"
    // where '#' indicate a number (e.g. wavelengh or number of events)

Function Opt_Calc () // Initiate all optical properties calculation

    Events_wave ()
    avgTemp_EWS_PWS ()
    TempDiff_EWS_PWS ()

End

Function Events_wave () // Make a wave containing a list of Arctic haze event

    Variable i

    String wpnt = "E"

    setdatafolder root:Waves
    make/o/d/n=94/t Events // Change the number of rows according to the number of Arctic haze events (e.g. n=__+1)

    For (i=0; i<94; i+=1) // Change the number of Arctic haze events if necessary (e.g. i<__+1)

        Events[i] = wpnt+num2str(i)

    Endfor

    deletepoints/m=0 0,1,Events // The first Arctic haze event start from E1

End

Function avgTemp_EWS_PWS () // Calculate the average temperature for each Arctic haze event

    Variable i

    String wname1 = "EWS_Temp_h_E"
    String wname2 = "PWS_Temp_E"

    String wname1_temp
    String wname2_temp

    setdatafolder root:Waves

    For (i=1; i<94; i+=1) // Change the number of Arctic haze events if necessary (e.g. i<__+1)
```

```

wname1_temp = wname1+num2str(i)
Wave fullname1 = $wname1_temp

make/o/d/n=94 Temp_avg_EWS_events, Temp_sdev_EWS_events, Temp_sem_EWS_events // Change the number of Arctic haze events
// if necessary (e.g. n=__+1)

wavestats/Q fullname1

Temp_avg_EWS_events[i] = v_avg // Average of temperature values
Temp_sdev_EWS_events[i] = v_sdev // Standard deviation of temperature values
Temp_sem_EWS_events[i] = v_sem // Standard error of the temperature mean

Endfor

For (i=1; i<94; i+=1) // Change the number of Arctic haze events if necessary (e.g. i< __+1)

wname2_temp = wname2+num2str(i)
Wave fullname2 = $wname2_temp

make/o/d/n=94 Temp_avg_PWS_events, Temp_sdev_PWS_events, Temp_sem_PWS_events // Change the number of Arctic haze events
// if necessary (e.g. n=__+1)

wavestats/Q fullname2

Temp_avg_PWS_events[i] = v_avg // Average of temperature values
Temp_sdev_PWS_events[i] = v_sdev // Standard deviation of temperature values
Temp_sem_PWS_events[i] = v_sem // Standard error of the temperature mean

Endfor

deletepoints/m=0 0,1, Temp_avg_EWS_events, Temp_sdev_EWS_events, Temp_sem_EWS_events, Temp_avg_PWS_events,
deletepoints/m=0 0,1, Temp_sdev_PWS_events, Temp_sem_PWS_events

End

Function TempDiff_EWS_PWS () // Calculate the temperature gradient between PWS and EWS for each Arctic haze event

Wave Temp_avg_EWS_events
Wave Temp_sdev_EWS_events
Wave Temp_sem_EWS_events
Wave Temp_avg_PWS_events
Wave Temp_sdev_PWS_events
Wave Temp_sem_PWS_events

duplicate/o Temp_avg_PWS_events, TempDiff_avg_events
duplicate/o Temp_sdev_PWS_events, TempDiff_sdev_events
duplicate/o Temp_sem_PWS_events, TempDiff_sem_events

TempDiff_avg_events = Temp_avg_PWS_events - Temp_avg_EWS_events // Positive temperature gradient indicate that a temperature
// inversion is present
TempDiff_sdev_events = Temp_sdev_PWS_events + Temp_sdev_EWS_events
TempDiff_sem_events = Temp_sem_PWS_events + Temp_sem_EWS_events

End

```