

**Mémoire préparé en vue de l'obtention de  
l'Habilitation à Diriger des Recherches  
Université de Lille**

Titre du mémoire

**Méthodologies innovantes en télédétection spatiale et application à l'étude  
des propriétés des aérosols en atmosphères claire et nuageuse.**

Présenté par  
**Fabien Waquet**

Laboratoire d'Optique Atmosphérique (UMR 8518)  
UFR de Physique - Bâtiment P5  
Université de Lille  
59655 Villeneuve d'Ascq Cedex

[fabien.waquet@univ-lille.fr](mailto:fabien.waquet@univ-lille.fr)



## **Remerciements**



# Table des matières

|  |    |
|--|----|
| <b>1. Introduction.....</b>  | 7  |
| 1.1. Contexte scientifique : Aérosols et climat.....   | 7  |
| 1.2. Contexte Technique.....   | 10 |
| 1.2.1. Observation des aérosols par télédétection.....   | 10 |
| 1.2.2. Mesure de la luminance totale et de la luminance polarisée.....   | 12 |
| 1.3. Positionnement de mes travaux.....  | 14 |
| <b>2. Travaux de recherche effectués.....</b>  | 17 |
| 2.1. Instruments polarisés.....  | 17 |
| 2.2. Caractérisation instrumentale.....  | 20 |
| 2.3. Campagnes de mesures.....   | 25 |
| 2.4. Transfert radiatif.....   | 30 |
| 2.4.1. Codes de transfert radiatif.....  | 30 |
| 2.4.2. La troncature.....  | 31 |
| 2.4.3. Modélisations approchées des interactions surface-atmosphère.....   | 33 |
| 2.5. Méthodes inverses.....  | 35 |
| 2.5.1. Sensibilité de la mesure passive polarisée aux propriétés des aérosols.....   | 35 |
| 2.5.2. Méthode « LUT » pour l'inversion des propriétés des aérosols au-dessus de l'océan.....                              | 38 |
| 2.5.3. Méthodes variationnelles.....   | 42 |
| 2.5.4. Polarisation de la surface.....   | 46 |
| 2.5.5. Inversion des propriétés des aérosols au-dessus des surfaces terrestres.....  | 49 |
| 2.5.6. Discussion : avantages et limitations.....  | 52 |
| 2.6. Aérosols au-dessus des nuages.....  | 53 |
| 2.6.1. Détection à l'aide de mesures passives polarisées.....  | 53 |
| 2.6.2. Construction d'un algorithme opérationnel.....  | 56 |
| 2.6.3. Absorption des aérosols au-dessus des nuages.....   | 60 |
| 2.6.4. Comparaison des propriétés des aérosols inversées au-dessus des nuages à l'aide de mesures passives et actives..... | 62 |
| 2.7. Comparaison avec les modèles du climat.....   | 68 |
| <b>3. Projet de recherche et perspectives.....</b>   | 72 |
| 3.1. Synergie entre la polarisation et l'infrarouge thermique pour l'étude des situations multicouches.....                | 72 |
| 3.2. Amélioration de l'inversion simultanée des propriétés microphysiques des aérosols et des nuages.....                  | 73 |
| 3.3. Détection des aérosols dans les couvertures nuageuses fractionnées.....   | 74 |
| 3.4. Synergie entre les mesures passives et actives pour des études d'impacts.....   | 77 |
| 3.5. Préparation de la synergie 3MI-UVNS-IASI-NG et validation à l'aide de mesures aéroportées.....                        | 79 |
| 3.6. Couplage des observations et de la modélisation pour des études climatiques...  | 81 |
| <b>4. Curriculum vitae.....</b>  | 84 |
| <b>5. Enseignement et encadrement scientifique.....</b>  | 87 |
| <b>6. Projets financés et autres activités liées à la recherche.....</b>   | 91 |
| <b>7. Liste des publications.....</b>  | 93 |
| <b>8. Bibliographie.....</b>   | 97 |



# 1. Introduction

## 1.1. Contexte scientifique : Aérosols et climat.

Les aérosols correspondent à l'ensemble des particules, solides ou liquides, en suspension dans l'atmosphère, à l'exception des gouttelettes d'eau et des cristaux de glace. Les aérosols primaires correspondent aux particules directement injectées dans l'atmosphère. Certains gaz dits précurseurs (ex : SO<sub>2</sub>), génèrent également, après transformation, des aérosols, dits secondaires. Ces particules peuvent être générées par des activités humaines ou résulter de processus naturels. Les particules issues de phénomènes naturels comprennent principalement les embruns et les poussières désertiques générées par l'érosion mécanique des surfaces par le vent. Les aérosols naturels incluent également les aérosols biogéniques (pollens), les aérosols volcaniques et les cendres issus des feux de végétation d'origine naturelle. Les poussières minérales constituent la plus grande part des aérosols naturels et sont généralement de taille supérieure au micromètre. Cependant toutefois l'existence de particules de taille sub-micrométrique dans la nature, telles que les particules issues des feux de forêts dans l'hémisphère nord. La distribution en taille des aérosols est typiquement bimodale avec un mode d'accumulation ou mode fin (particules de rayon  $r$  compris entre 0.05 et 0.5 microns) et un mode grossier (0.5 μm ≤  $r$  ≤ 10 μm). Leur nature chimique est très complexe et variable. Chaque particule possède une composition chimique unique. Une population d'aérosols peut également être le résultat d'un mélange de particules d'origines diverses. Les particules anthropiques fines sont principalement constituées de sulfate, nitrate, ammonium et composés carbonés (suie ou carbone organique). Les oxydes et les carbonates constituent les principaux composants des poussières minérales. La morphologie des aérosols est également particulièrement complexe et dépend principalement des mécanismes qui les génèrent. Les aérosols peuvent présenter des formes très variées (exemple : sphérique, sphéroïde ou cubique). Les aérosols sont plus ou moins solubles et hygroscopiques en fonction de leur nature. Les propriétés physico-chimiques de ces particules vont contrôler leurs propriétés optiques et donc leurs effets sur le rayonnement et le climat. En fonction de leurs propriétés, ces particules peuvent également avoir des effets sur la santé, la pollution atmosphérique, la visibilité et l'environnement.

Les aérosols affectent le climat de manière directe en interagissant avec les rayonnements solaire et tellurique (McCormick and Ludwig, 1967). Ces particules diffusent une partie du rayonnement solaire vers l'espace ce qui induit une augmentation de l'albédo de la planète et donc une diminution de la quantité de rayonnement atteignant la surface, provoquant son refroidissement. Cet effet est appelé l'« effet direct » de l'aérosol. Au sommet de l'atmosphère, le signe et l'amplitude de cet effet dépendent des propriétés optiques de l'aérosol mais également de la surface sous-jacente. L'effet induit par une couche d'aérosols sur l'albédo d'une scène peut être estimé sur le spectre solaire à partir de l'expression approchée suivante (Lenoble et al., 1982) :

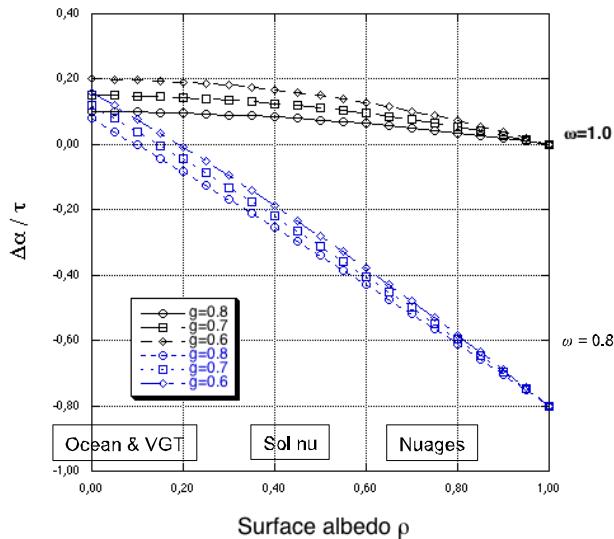
$$\Delta\alpha = \rho_{s,aer} - \rho_s = \tau \times \left( 2 \times \varpi \times b (1 - \rho_s)^2 - 4 \times (1 - \varpi) \times \rho_s \right) \quad (1)$$

$$\text{avec } b = \frac{1}{2} \times (1 - g)$$

La dépendance des termes à la longueur d'onde a été omise dans l'équation 1 par souci de simplification. Le symbole  $\tau$  correspond à l'épaisseur optique, définie comme l'intégrale sur la colonne atmosphérique du coefficient l'extinction des aérosols,  $\varpi$  est l'albédo de simple

diffusion qui caractérise l'efficacité des processus de diffusion du rayonnement par les particules par rapport à l'extinction (=1 si particules non absorbantes) et  $g$  le facteur d'asymétrie qui quantifie le sens de la diffusion (lié à la fonction de phase des aérosols).  $\rho_s$  est l'albédo de la surface lambertienne et  $\rho_{s,aer}$  l'albédo de la scène en présence d'aérosols.

La figure 1 montre la quantité  $\Delta\alpha / \tau$  pour différent type d'aérosols en fonction de l'albédo de la surface.



**Figure 1.** Perturbation de l'albédo d'une scène par une couche d'aérosols, normalisé par son épaisseur optique ( $\tau$ ), en fonction de l'albédo de la surface ( $\rho_s$ ) et pour différents types d'aérosols ( $\omega, g$ ). (source : thèse de Fanny Peers)

La figure 1 montre que des aérosols absorbants ( $\omega = 0.8$ ) présents au-dessus d'un nuage ou d'une surface terrestre très brillante provoquent une diminution de l'albédo de la scène (assombrissement), ce qui induit un effet de réchauffement (i.e. augmentation de la quantité de rayonnement piégé par le système terre-atmosphère). A l'inverse, des aérosols diffusants présents au-dessus d'une surface sombre augmentent l'albédo de la scène et provoque le refroidissement de la planète.

Les aérosols issus des feux de biomasse (riches en suie) et les poussières minérales sont les principaux aérosols absorbants. En absorbant le rayonnement solaire incident, les aérosols provoquent également un refroidissement de la surface. Mais dans ce cas, le rayonnement absorbé provoque le réchauffement de la couche d'atmosphère, là où la couche d'aérosols est localisée. La redistribution de la chaleur au sein de l'atmosphère provoque la modification du gradient vertical de température, ce qui affecte le phénomène d'évaporation et la formation des nuages. Cet effet est appelé l'« effet semi-direct » et pourrait partiellement compenser l'effet direct des aérosols à l'échelle régionale (Hansen et al., 1997, Ramanathan, 2001). C'est un processus encore mal caractérisé au niveau global qui peut, selon les cas, renforcer, dissiper ou stabiliser la couverture nuageuse. Cet effet dépend du type de nuage et de la position relative aérosol-nuage (Koch et Del Genio, 2010). Cet effet peut également être vu comme un réajustement du système climatique à l'effet direct (Boucher et al., 2013). Les aérosols interviennent également dans la formation des nuages comme noyaux de condensation et noyaux glaçogènes. Dans le cas de nuages d'eau liquide, l'augmentation de la concentration en aérosols provoque l'accroissement du nombre de noyaux de condensation. Cet effet s'accompagne de la réduction de la taille des gouttelettes d'eau, ce qui entraîne une augmentation de l'albédo des nuages. Cet effet est appelé le

premier « effet indirect » des aérosols (Twomey, 1974). Le « second effet indirect » des aérosols correspond aux répercussions de la diminution de la taille des gouttelettes sur la durée de vie des nuages et les précipitations (Albrecht, 1989, Rosenfeld, 2000).

Malgré l'amélioration de notre connaissance de leurs effets, la quantification de l'impact des aérosols reste une problématique majeure pour les sciences du climat. Le dernier rapport IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change, 2014) présente le bilan des différents forçages radiatifs<sup>1</sup> moyens globaux du système climatique et leurs incertitudes, estimés à l'aide de modèles. Les aérosols sont globalement associés à des effets de refroidissement (forçage radiatif négatif). Les forçages effectifs<sup>2</sup> des aérosols se situent respectivement entre -0.95 et +0.05 W.m<sup>-2</sup>, pour les interactions aérosols-rayonnement, et entre -1.2 et 0.0 W.m<sup>-2</sup> pour les interactions aérosols-nuages. Ces forçages sont donc susceptibles de contre balancer en partie l'effet de réchauffement des gaz à effet de serre, dont le forçage effectif se situe entre +2.26 W.m<sup>-2</sup> et +3.4 W.m<sup>-2</sup>. Les fortes incertitudes associées aux effets des aérosols s'expliquent, en partie, par la difficulté à représenter ces processus d'interactions complexes dans les modèles. Le premier effet indirect et l'effet semi-direct sont actuellement quantifiés au niveau global, avec des niveaux de confiance qualifiés de « faibles » par le dernier rapport IPCC. Les effets des aérosols sur les précipitations et la durée de vie des nuages sont encore plus mal caractérisés. La variabilité des propriétés des aérosols et leurs distributions temporelle et spatiale, particulièrement hétérogènes, rendent également l'étude des effets des aérosols sur le climat et les nuages particulièrement complexe. Bien que les interactions des aérosols avec le rayonnement soient dorénavant considérées comme étant bien comprises (« niveau de confiance élevé »), de fortes disparités demeurent sur l'estimation du forçage direct des aérosols dans les modèles (Myhre et al., 2013). L'exercice d'inter-comparaison des modèles globaux du climat (projet AEROCOM) a permis de mieux appréhender l'origine de ces différences et de localiser les régions présentant les plus fortes disparités. Ces incertitudes sont importantes pour des scènes complexes pour lesquelles l'albédo de la surface ou de la cible sous-jacente à la couche d'aérosols est mal caractérisé. Les incertitudes sont notamment particulièrement fortes lorsque des aérosols absorbants sont localisés au-dessus de nuages bas, comme dans la région du sud-est de l'Océan Atlantique (Stier et al., 2013). Ces différences inter-modèles augmentent également avec le niveau d'absorption des aérosols considérés dans les exercices de modélisation. Ce résultat est en accord avec la figure 1 qui montre l'augmentation de l'amplitude du forçage avec l'absorption et la possibilité pour des aérosols absorbants d'avoir un forçage positif ou négatif en fonction de l'albédo de la cible sous-jacente. La réduction de l'incertitude sur l'effet radiatif direct des aérosols dépend donc de la capacité des modèles à bien représenter les propriétés radiatives des aérosols et, en particulier, de leur capacité à absorber le rayonnement. Les propriétés radiatives des nuages et des surfaces, ainsi que la distribution verticale des couches d'aérosols et de nuages, doivent également être bien représentées dans les modèles.

---

<sup>1</sup> On appelle forçage radiatif, exprimé en W.m<sup>-2</sup>, toute modification de l'énergie rayonnante nette propre au système climatique. Le forçage radiatif est calculé pour un facteur perturbant donné et par rapport à un état de référence. Pour l'IPCC, les valeurs prennent comme référence le début de l'ère industrielle, en 1750, lorsque l'influence de l'homme sur la composition de l'atmosphère était limitée.

<sup>2</sup> Pour le calcul du forçage radiatif, toutes les propriétés de l'atmosphère et de la surface sont identiques entre le système de référence et celui prenant en compte l'agent perturbateur. Le terme « effectifs » signifie que le calcul prend aussi en compte les ajustements de l'atmosphère et de la surface entre les deux systèmes. Le forçage radiatif effectif est un meilleur indicateur des éventuelles réponses en température de l'atmosphère.

## 1.2. Contexte Technique.

### 1.2.1. Observation des aérosols par télédétection.

Afin de mieux comprendre les effets des aérosols sur le climat, il est nécessaire de mesurer et de modéliser leur concentration dans l'atmosphère et leurs propriétés microphysiques (distribution en taille, forme et la composition chimique). Les méthodes de télédétection passive ont apporté des réponses adaptées à l'étude des aérosols. Le rayonnement émis et diffusé par la Terre vers l'espace dépend des propriétés radiatives de son atmosphère et de sa surface. Les caractéristiques physiques et chimiques des aérosols (taille, forme, composition) sont responsables de leurs propriétés de diffusion et d'absorption. En mesurant les caractéristiques du rayonnement diffusé par l'atmosphère, à l'aide de capteurs passifs depuis le sol, l'atmosphère ou l'espace, il est possible d'obtenir, après une modélisation appropriée, la restitution de certaines propriétés des aérosols observés. Les observations effectuées depuis le sol, à l'aide de photomètres permettent de restituer de manière très précise les propriétés des aérosols sur la colonne atmosphérique. L'épaisseur optique et sa dépendance spectrale sont mesurées précisément. Les mesures photométriques sont inversées pour fournir l'indice de réfraction complexe des aérosols en fonction de la longueur d'onde, leur distribution en taille et la fraction de particules non-sphériques. Ce type de mesures est principalement utilisé pour définir des modèles d'aérosols et également pour valider les observations satellitaires et les modèles du climat. Les stations du réseau de photomètres AERONET/PHOTONS, réparties sur l'ensemble de la planète, fournissent de façon routinière les propriétés des aérosols à l'aide de mesures photométriques. Les observations effectuées dans l'atmosphère depuis avion permettent d'acquérir un jeu d'observations très variées. Les observations des radiomètres embarqués lors de campagnes aéroportées peuvent être complétées par des mesures effectuées depuis l'avion ou la surface (sondages météorologiques, mesure de la nature chimique des aérosols par prélèvement). Les campagnes aéroportées permettent de caractériser les propriétés de certains aérosols ou des processus qui leurs sont associés. Ces campagnes sont parfois également l'occasion d'évaluer de nouveaux concepts instrumentaux ou de nouvelles méthodes de restitution. Les propriétés des aérosols montrent une forte variabilité spatiale et temporelle. Les méthodes de télédétection spatiale permettent une observation globale et journalière des aérosols et constituent donc un outil privilégié pour leur surveillance. Pour les aspects climatiques, l'observation spatiale est principalement utilisée pour valider les modèles et les contraindre. Ces données utilisées seules ou combinées avec des simulations ont principalement permis d'améliorer nos connaissances sur les estimations du forçage radiatif direct des aérosols (Boucher et Tanré, 2000, Forster 2007).

Les méthodes de télédétection spatiale se sont développées il y a plus d'une quarantaine d'années (Fraser, 1976, Quentzel and Koepe, 1984, Rao et al., 1989, Tanré et al., 1997, Kaufman et al., 2002, Dubovik et al., 2011). Les premiers instruments mis en orbite (exemple : METEOSAT, NOAA), s'intéressaient uniquement à la caractérisation de l'aspect énergétique du rayonnement dans les spectres solaire et tellurique. Une seule bande (large) était utile à l'étude des aérosols et les mesures se faisaient dans une seule direction (par pixel). Le produit aérosol obtenu était principalement l'épaisseur optique qui caractérise la charge en aérosols sur la colonne atmosphérique. Le spectromètre TOMS (1978) utilisant deux canaux sensibles au rayonnement dans l'ultraviolet (0.340-0.380 µm) a permis de détecter les aérosols absorbant dans l'ultraviolet au-dessus des océans et des terres. Des techniques basées sur l'utilisation de l'infrarouge thermique ont été développées pour

l'étude des aérosols désertiques. De part leur taille et leur propriété d'absorption, ces aérosols ont un impact radiatif important dans l'infrarouge thermique (Balkanski et al., 2007). Les canaux infrarouges de METEOSAT (10-12.5 μm) et AVHRR (3.7-10 μm) ont été initialement utilisés pour détecter les poussières désertiques et ont permis de fournir des estimations de leur épaisseur optique (Legrand, 1988, Pierangelo et al., 2004). La génération d'instruments suivante a été spécifiquement dédiée à l'étude des aérosols et à la caractérisation plus fine de leurs effets radiatifs. L'instrument POLDER constitue le premier instrument directement dédié à l'étude spécifique des propriétés des aérosols utilisant des mesures spectrales, multi-angulaires et polarisées (Deschamps et al., 1994). POLDER utilise des canaux du visible au proche-infrarouge (0.44-0.865 μm). L'utilisation d'une matrice de détecteurs et d'une caméra grand champ a permis l'observation d'une même cible à la surface de la terre sous différents angles. La quantité de lumière, mesurée par le capteur au niveau du satellite, dépend fortement de l'angle sous lequel sont observées la surface terrestre et son atmosphère. Les mesures angulaires permettent une caractérisation plus complète des propriétés de diffusion des aérosols et donc de leurs caractéristiques physiques. Les données angulaires de l'instrument POLDER acquises dans les voies polarisées ont également été exploitées pour caractériser les aérosols. De nombreuses études ont montré la sensibilité de la polarisation à la distribution en taille, à la forme et à l'indice de réfraction des aérosols (Mishchenko et al., 1997). La polarisation est également sensible à la présence d'aérosols du mode fin au-dessus des terres (Deuzé et al., 2001). Les caractéristiques des mesures POLDER sont également un avantage pour étudier les nuages et permettent de caractériser la phase thermodynamique des nuages (Goloub et al., 2000, Riedi et al., 2010), d'estimer l'altitude du sommet du nuage (Vanbause et al., 2003) et de restituer la distribution en taille des gouttelettes d'eau (Bréon et Goloub, 1998). L'instrument POLDER<sup>3</sup> a été en orbite sur 3 plateformes spatiales ADEOS I (1997) et II (2000) et PARASOL (2005-2015). L'instrument MODIS, installé sur les plates-formes Terra et Aqua, utilise une large gamme de mesures spectrales (0.47-2.1 μm) pour séparer la composante du mode fin des aérosols de la composante grossière. En effet, la signature spectrale de l'aérosol dans le domaine du spectre solaire est principalement affectée par le paramètre de taille de la particule (Tanré et al., 1997). L'instrument MISR (Multi-angle Imaging Spectroradiometer) constitue une approche combinant l'information spectrale et angulaire sans toutefois incorporer la polarisation. Les instruments MODIS, MISR et OMI, successeur de TOMS, ainsi qu'un grand nombre d'autres instruments (exemple : MERIS, SeaWiFS, SCHIAMACHY, IASI), ont été utilisés et continuent d'être utilisé pour l'étude des aérosols.

Les méthodes utilisant l'information spectrale fournissent principalement l'épaisseur optique des aérosols et également le coefficient d'Ångström, un paramètre indicatif de la taille des particules (Kaufman et al., 2002). Les instruments permettant des mesures angulaires apportent une information supplémentaire sur la forme des particules (Herman et al., 2005). Les paramètres des aérosols et des nuages sont typiquement restitués à une résolution spatiale de l'ordre de la dizaine ou la vingtaine de kilomètre carré. Notons que l'instrument MODIS permet d'effectuer des mesures à une résolution spatiale plus fine (250×250 m<sup>2</sup> pour 644 nm et 855 nm et 500×500 m<sup>2</sup> pour 466, 553, 1242, 1632 et 2130 nm) que la plupart des capteurs dédiés à l'étude des aérosols et de nuages (exemple : 6×7 km<sup>2</sup>

---

<sup>3</sup> Sur PARASOL la plus grande dimension de la matrice CCD de POLDER a été positionnée parallèlement à la trace, la fauchée est moins large, mais en contrepartie, l'instrument dispose de plus de directions de visée (jusqu'à 16). La polarisation est mesurée à 490 nm et non plus à 440 nm, comme sur POLDER 1 et 2, et un canal, centré sur 1020 nm a été ajouté.

pour POLDER et  $13 \times 24 \text{ km}^2$  pour OMI). Ces capteurs sont le plus souvent héliosynchrones et permettent d'obtenir une couverture journalière quasi-globale. Les capteurs embarqués sur des satellites géostationnaires, tel SEVIRI, apportent une information complémentaire sur l'évolution temporelle des propriétés des aérosols et des nuages (i.e. inversion de l'épaisseur optique en aérosol effectuée tout les 15 minutes pour SEVIRI). Les paramètres décrivant l'aérosol sur le spectre solaire sont restitués avec une plus grande précision au-dessus des océans qu'au-dessus des continents. Dans ce dernier cas, la principale difficulté consiste à séparer la contribution radiative de l'aérosol de celle de la surface, typiquement plus intense que celle de l'aérosol. Pour une raison similaire, la détection des aérosols a été, jusqu'à très récemment, restreinte aux situations en ciel clair (« sans nuage ») puisque les nuages constituent une cible particulièrement brillante. Les méthodes opérationnelles développées pour les nuages fournissent principalement l'épaisseur optique des nuages. L'information multi-spectrale de MODIS permet de fournir également une information sur le rayon effectif des particules nuageuses.

Les méthodes de télédétection active sont également utilisées pour l'étude des aérosols. Dans ce cas les instruments sondent les propriétés de l'atmosphère selon le principe des radars en émettant une onde électromagnétique et en mesurant les caractéristiques de l'onde rétrodiffusée. Les lidars (light detection and ranging) constituent les systèmes optiques les plus performants pour caractériser les propriétés verticales des aérosols. Ce type d'instrument permet notamment de fournir une information sur l'altitude de la couche d'aérosol ou de nuages à l'aide de mesures effectuées depuis le sol ou depuis l'espace. La constellation de satellites appelée l'A-Train a permis de mettre en œuvre simultanément des capteurs passifs et actifs, dédiés à l'étude du climat et à l'observation de la planète. CALIOP (Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization) est l'un des instruments de télédétection active du A-Train. À bord du satellite CALIPSO, ce lidar à deux longueurs d'onde (532 et 1064 nm) fournit des profils verticaux à haute résolution de l'atmosphère (30 à 60 mètres de résolution verticale). CALIOP dispose également de deux voies dédiées à la mesure des composantes orthogonale et parallèle de la polarisation à 532 nm (Winker et al., 2010). La combinaison de ces deux voies permet la mesure de la dépolarisation, une quantité présentant une sensibilité à la forme des particules. Aqua a été la première plateforme lancée en 2002. Les plateformes CALIPSO et PARASOL ont rejoint l'A-Train à partir de janvier 2006 et décembre 2004, respectivement, et PARASOL a fait partie de l'A-Train jusqu'en décembre 2009. Les capteurs de l'A-Train décrivent une orbite héliosynchrone et se succèdent à quelques minutes d'intervalle permettant d'obtenir des observations quasi-simultanées, autorisant des combinaisons de mesures ou des synergies instrumentales. Parmi les instruments utiles pour la thématique des aérosols et des nuages, citons également l'instrument CERES (Clouds and the Earth's Radiant Energy System), sur Aqua, un radiomètre dédié à l'estimation des flux et à l'étude du bilan radiatif de la terre.

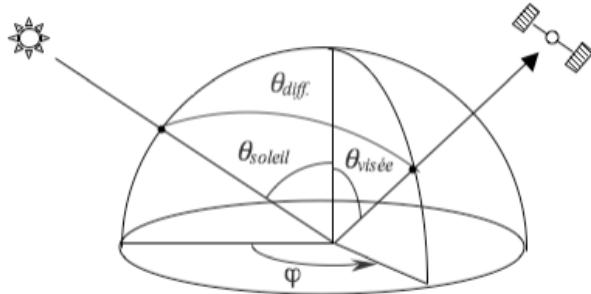
### 1.2.2. Mesure de la luminance totale et de la luminance polarisée.

Les radiomètres passifs sont équipés de détecteurs qui permettent de mesurer la puissance du rayonnement électromagnétique émis ou réfléchi par une cible. Cette puissance est mesurée pour un angle solide donné, qui est caractérisé par la géométrie de l'instrument. Cette quantité, divisée par la surface apparente du détecteur nous donne une luminance qui s'exprime en  $\text{W.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\mu\text{m}^{-1}$ . Si on utilise des filtres, on obtient luminance spectrale ( $\text{W.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\mu\text{m}^{-1}$ ). La quantité typiquement utilisée en télédétection passive est la luminance normalisée donnée par l'équation 2.

$$L_\lambda(\theta_s, \theta_v, \varphi_s, \varphi_v) = \frac{\pi L_\lambda^*(\theta_s, \theta_v, \varphi_s, \varphi_v)}{E_{s,\lambda}} \quad (2)$$

avec  $L_\lambda^*$  la luminance spectrale,  $E_{s,\lambda}$  le flux solaire incident mesuré au sommet de l'atmosphère, exprimée en  $\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \mu\text{m}^{-1}$ ,  $\theta_s$  et  $\theta_v$  les angles zénithaux solaire et de visée, et  $\varphi_s$  et  $\varphi_v$ , les angles azimutaux solaire et de visée. On obtient la réflectance en divisant cette quantité par le cosinus de l'angle solaire zénithal.

Le rayonnement résultant des interactions entre les particules et les surfaces terrestres est partiellement polarisé. Les principaux processus qui polarisent le rayonnement sont la diffusion par les molécules et les particules atmosphériques et le phénomène de réflexion du rayonnement sur les surfaces. L'intensité du rayonnement mesurée par un capteur (luminance totale) est donc la somme des luminances naturelles (non polarisée) et de la luminance polarisée ( $L = L_{\text{nat}} + L_{\text{pol}}$ ).



**Figure 2.** Définition de la géométrie par rapport au point observé ( $\varphi = \varphi_v - \varphi_s$ ).  $\theta_{\text{diff}}$  est l'angle de diffusion, noté  $\Theta$  dans la suite.

L'intensité et la polarisation de la lumière peuvent être décrite à l'aide du vecteur de Stokes  $\mathbf{I}^T = (I, Q, U, V)$ .  $I$  est une mesure de l'intensité du rayonnement et  $Q$  et  $U$  définissent l'amplitude et l'orientation de la fraction de lumière polarisée linéairement,  $V$  caractérise la polarisation elliptique. Ces paramètres ont la dimension d'une énergie et sont reliés à l'amplitude des composantes orthogonales du champ électrique moyennées dans le temps (Chandrasekhar, 1950).

Le rayonnement diffusé et réfléchi par le système terre-atmosphère ne présente qu'une faible ellipticité ( $V \approx 0$ ) et ce dernier peut donc être considéré comme polarisé linéairement. La connaissance des paramètres  $I$ ,  $U$  et  $Q$  suffit donc à sa caractérisation complète. L'expression du taux de polarisation  $P$  et de la direction de polarisation  $\chi$ , défini par rapport à un axe de référence, se déduisent des paramètres de Stokes comme suit :

$$P = \frac{\sqrt{Q^2 + U^2}}{I} \quad (3)$$

$$\tan(2\chi) = \frac{U}{Q} \quad (4)$$

On définit également la luminance polarisée normalisée, utilisée dans de nombreuses applications en télédétection :

$$L_p = \frac{\pm \pi \sqrt{Q^2 + U^2}}{E_s} \quad (5)$$

La luminance polarisée est une quantité signée, celle-ci est positive lorsque le champ électrique de l'onde polarisée est perpendiculaire au plan de diffusion (défini par les directions incidente et de visée) et négative quand il lui est parallèle.

Les radiomètres passifs de façon générale sont équipés de détecteurs de type photoélectrique. Ils transforment un flux de photons incidents en une différence de potentiel. Cette différence de potentiel est ensuite convertie en compte numérique  $CN$ . Le compte numérique correspond à la mesure instrumentale brute que l'on convertit lors de l'étalonnage en une luminance normalisée  $L$ . Ce type de détecteurs présente un signal d'obscurité, ce qui signifie qu'une différence de potentiel non nulle est observée lorsque le détecteur ne reçoit aucune lumière. Un volet mécanique permet de mesurer systématiquement ce signal d'obscurité. Cette mesure, est dite également de mesure du zéro optique,  $CN_0$ . Dans le cas de d'instrument de type POLDER disposant d'une matrice CDD de détecteurs, un modèle radiométrique simple de la luminance mesurée s'écrit :

$$L_{ij} = k_{ij} \frac{(CN_{ij} - CN_{ij,0})}{t_{exp}} \quad (6)$$

avec  $i$  et  $j$  les indices repérant les différents détecteurs (pixels) de la matrice,  $k_{ij}$  les coefficients d'étalonnage absolu en énergie,  $t_{exp}$  le temps d'exposition et  $L_{ij}$  la luminance correspondante.

Les paramètres de Stokes peuvent être mesurés en utilisant un détecteur uniquement sensible à l'intensité du rayonnement. Supposons une onde électromagnétique quelconque traversant un système polarisant (exemple : une lame qui déphase), puis un analyseur (supposé ici idéal) ; l'intensité mesurée derrière un tel système par un détecteur s'écrit, à un terme de transmission près :

$$I(\alpha, \varphi) = \frac{1}{2} [I + Q\cos(2\alpha) + (U\cos(\varphi) - V\sin(\varphi))\sin(2\alpha)] \quad (7)$$

avec  $\varphi$  le déphasage introduit par la lame entre les composantes orthogonales du champ électrique ( $E_l$  et  $E_r$ ), perpendiculaires à la direction de propagation ( $\vec{k} = \vec{r} \wedge \vec{l}$ ), et  $\alpha$  l'angle de rotation du analyseur par rapport à l'axe  $\vec{l}$ .

### 1.3. Positionnement de mes travaux :

Mon intérêt pour les sciences environnementales, de l'atmosphère et du rayonnement m'a conduit naturellement à orienter mes études, puis ma recherche vers l'observation spatiale et ses applications pour des études d'intérêts climatiques. Les travaux de recherche que j'ai mené depuis ma thèse ont principalement porté sur le développement de nouvelles méthodes de télédétection des aérosols depuis l'espace. Mes travaux, dans certains cas, ont également permis l'amélioration de méthodes existantes. L'analyse géophysique des nouveaux paramètres des aérosols obtenus avec ces méthodes et leur exploitation pour des

études climatiques, entrent également dans mes activités de recherche menées ces dix dernières années.

Lorsque j'ai débuté mes travaux de thèse en 2002, il existait des méthodes permettant la détection des aérosols au-dessus des océans et des terres en atmosphère claire ; c'est à dire en l'absence de nuages. Ces méthodes étaient plus ou moins sophistiquées, et présentaient encore des limitations. Mes travaux concernant l'étude des aérosols en atmosphère non-nuageuse, ont principalement permis d'améliorer nos connaissances sur les aérosols et les surfaces (moins d'hypothèses sur le propriétés des aérosols et meilleur estimation de la surface). Les futurs capteurs spatiaux prévus par l'ESA et la NASA incluront des polarimètres permettant d'obtenir des informations multi-spectrales, polarisées et multi-angulaires du visible au moyen-infrarouge. En cela, ces futurs capteurs combinent les avantages des capteurs spécifiquement dédiés à l'étude des aérosols, tels que POLDER et MODIS. L'instrument 3MI prévu par l'ESA, héritier des instruments POLDER, sera également associé à des instruments effectuant des mesures dans l'UV, avec le spectromètre UV-NS, et dans l'infrarouge thermique avec l'interféromètre IASI-NG. Cela permettra d'étendre l'inversion des propriétés des aérosols sur une gamme spectrale large. Les algorithmes se complexifient en allant toujours vers moins d'hypothèses sur la modélisation des surfaces et sur les propriétés microphysiques et optiques des aérosols. Ces futures méthodes seront également de moins en moins restrictives en termes de type de scènes traité et devraient, à terme, inclure l'inversion simultanée des propriétés des aérosols, des nuages, des surfaces, et potentiellement des concentrations en gaz. On peut donc s'attendre à de moins en moins d'écart entre les paramètres en aérosol fournis par ces différents capteurs de dernière génération.

J'ai contribué pour ma part à ces développements à différents niveaux. Mes travaux de thèse ont débuté par la caractérisation d'un capteur aéroporté (MICROPOL) couplant l'information multi-spectrale et polarisée du visible au moyen infrarouge, sans toutefois inclure de mesures directionnelles. Au-dessus des terres, la principale difficulté dans les méthodes de télédétection consiste à estimer la contribution de la surface. Différents algorithmes permettaient à l'époque de traiter ces scènes avec plus ou moins de précision. J'ai développé une méthode utilisant la polarisation mesurée à 2200 nm, où l'effet de l'atmosphère est minimisé, pour inverser la surface car celle-ci est quasiment spectralement neutre. J'ai poursuivi ces activités à GISS en post-doctorat, cela m'a conduit à développer des méthodes variationnelles permettant d'estimer un modèle microphysique détaillé des propriétés des aérosols. J'ai utilisé cette méthode pour modéliser les mesures de l'instrument de la NASA le Research Scanning Polarimeter (RSP), effectuant des mesures directionnelles et multi-spectrale jusqu'à 2200 nm. J'ai ensuite couplé cette méthode avec un code permettant le calcul des propriétés de particules non-sphériques. J'ai appliqué ces algorithmes à l'analyse des données du capteur spatial POLDER/PARASOL développé par le LOA et le CNES. Au-dessus de l'océan, l'algorithme opérationnel développé pour l'instrument POLDER (Herman et al., 2005), à l'époque de ma thèse, utilisait encore des hypothèses sur les propriétés d'absorption des aérosols. Au cours de mes travaux, j'ai amélioré le principe de l'algorithme et la base des modèles. Cela m'a permis de restituer l'absorption et l'albédo de diffusion simple des aérosols dans le proche-infrarouge au-dessus de l'océan au niveau global. Cela n'impacte que faiblement la restitution de l'épaisseur optique en aérosol mais cela permet de spécifier le type d'aérosol via la connaissance de son absorption. Ma contribution la plus novatrice dans mon domaine est sans aucun doute le développement d'une méthode télédétection passive permettant de caractériser les aérosols transportés au-dessus des nuages. Cette contribution est réellement novatrice car il n'existe pas d'information sur les aérosols pour les scènes nuageuses. Jusqu'à présent, on utilisait des masques nuages pour éliminer ces scènes. Les scènes nuageuses sont des cibles très

réfléchissantes, ce qui rend particulièrement difficile la détection des aérosols. C'est pourtant pour ce type de scènes que les incertitudes sur l'effet direct des aérosols sont maximales. La possibilité de développer une méthode permettant de progresser sur l'étude des interactions aérosol-nuage a également représenté une motivation importante. Je me suis donc investi sur cette thématique depuis 2009. Ces travaux constituent un travail pionnier dans mon laboratoire et également au niveau international. Ces activités ont notamment été récompensées par un prix de recherche international. Les données uniques fournies grâce à ces développements sont désormais distribuées par le centre de données et de service ICARE.

Les travaux que j'ai menés dans les laboratoires LOA et GISS m'ont permis de me spécialiser dans le transfert radiatif incluant la polarisation. Mes connaissances en transfert radiatif m'ont été particulièrement utiles pour adapter les codes à mes besoins, proposer des simplifications pour des applications opérationnelles, et aussi, dans certain cas, participer à leur amélioration. Mes travaux ont montré que seule la polarisation permet de restituer les principaux paramètres des aérosols au-dessus des nuages. Les méthodes alternatives développées par la suite utilisent plus d'hypothèses et, comme nous le rappellerons plus loin, ne sont pas sensibles à l'ensemble des aérosols (uniquement par exemple aux aérosols absorbants). Mes travaux ont également souligné l'importance de la polarisation qui combinée, avec des mesures en intensité, permet de façon unique de lever l'ambiguïté sur l'inversion des propriétés de diffusion et d'absorption des aérosols. L'ensemble de ces activités lié à modélisation du signal et à son inversion nécessite également de bien connaître l'instrumentation et la mesure. Dans la suite, je vais tout d'abord résumer mes activités portant sur les aspects instrumentaux de mon travail, liés à la caractérisation et à l'étalonnage d'un radiomètre et à la réalisation de campagne de mesures. Je résumerai ensuite mes travaux menés sur le transfert radiatif. Ensuite, je retracerai les développements que j'ai réalisés sur les « méthodes inverses » tout d'abord en atmosphère claire, au-dessus des océans et des terres, puis en atmosphère nuageuse. La partie concernant les aérosols au-dessus des nuages est la plus développée, de part son importance dans ma carrière, et aussi par ce qu'elle a fait l'objet de deux thèses de doctorat que j'ai principalement encadrées. Ces développements méthodologiques et ces nouveaux paramètres m'ont permis d'étudier, avec mes étudiants, certains effets des particules absorbantes sur le climat et les nuages. Je résumerai notamment les résultats obtenus concernant la répartition de ces aérosols, au niveau global, et leur représentation dans les modèles du climat. La dernière partie développe mon projet de recherche et aborde les principales perspectives concernant mes travaux futurs.

## 2. Travaux de recherche effectués.

### 2.1. Instruments polarisés.

Les travaux menés durant ma carrière ont tous en commun l'utilisation de mesures polarisées fournies par des polarimètres spatiaux ou aéroportés. Les futures missions spatiales prévues par les agences spatiales européenne, américaine et également chinoise, incluent des radiomètres multi-spectraux, multidirectionnels et polarisés pour l'étude des aérosols. Afin de présenter le contexte international de la recherche sur cette thématique, je présente les différents instruments sur lesquels j'ai travaillé et, également, les nouveaux concepts instrumentaux proposés pour effectuer des mesures polarisées depuis l'espace.

#### *Les instruments POLDER et OSIRIS.*

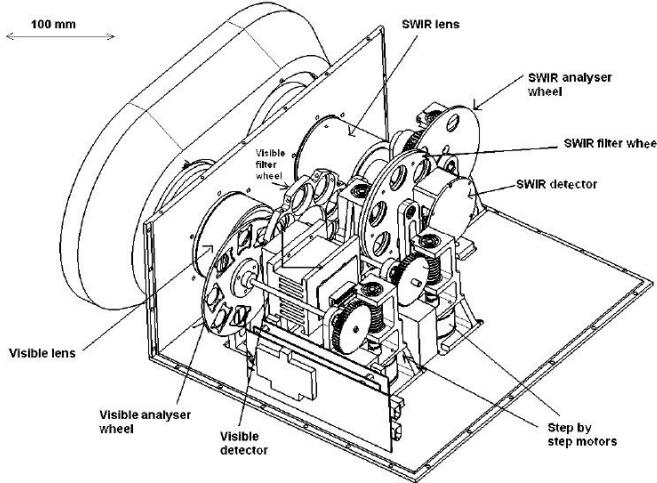
L'instrument POLDER reste, à ce jour, le seul instrument à avoir permis d'effectuer des mesures polarisées, directionnelles et spectrales depuis l'espace sur 3 plateformes différentes (ADEOS I et II puis PARASOL). Pour POLDER, la polarisation du rayonnement est mesurée en considérant successivement 3 positions d'un analyseur (positions décalées de 60°). La mesure de la polarisation est dite « séquentielle », car les 3 mesures ne sont pas réalisées simultanément. Les formules suivantes permettent de retrouver les paramètres de Stokes  $I$ ,  $Q$  et  $U$ .

$$\begin{aligned} I &= \frac{2}{3} [I(0,0) + I(60,0) + I(120,0)] \\ Q &= \frac{2}{3} [\{I(0,0) - I(60,0)\} + \{I(0,0) - I(120,0)\}] \\ U &= \frac{2}{\sqrt{3}} [I(60,0) - I(120,0)] \end{aligned} \quad (8)$$

POLDER est composé d'une optique télécentrique à large champ, d'une roue, qui porte les filtres et les analyseurs, et d'un détecteur CCD à deux dimensions. Dans sa dernière version sur PARASOL, le capteur effectue des mesures dans 9 bandes spectrales allant du visible (443 nm) au proche infrarouge (1020 nm), incluant 3 canaux polarisés : 490, 670 et 865 nm. Pour chaque canal polarisé, le même filtre apparaît alors trois fois, doublé d'un analyseur. Le principe de la mesure directionnelle se base sur le recouvrement des images acquises consécutivement. Son optique grand champ permet à l'instrument d'observer une cible selon 16 géométries de visée différentes. Les images acquises pour chaque voie polarisée doivent être registrés spatialement. En effet, du fait du mouvement du satellite, la scène observée n'est pas rigoureusement la même pour les 3 canaux polarisés. En l'absence d'une registration spatiale permettant de superposer les images, le calcul de la luminance polarisée peut être biaisé, en particulier lorsque la scène est hétérogène. Un dispositif embarqué (un prisme) est utilisé pour compenser, au premier ordre, les effets du mouvement du satellite durant l'acquisition ces mesures successives. Une registration spatiale est réalisée a posteriori afin de minimiser ces effets.

L'instrument OSIRIS est la maquette aéroportée du futur instrument 3MI de l'ESA, prévu pour 2021. Il est basé sur le concept de l'instrument POLDER. Il est toutefois composé de deux systèmes d'optique séparés, dédiés respectivement au moyen-infrarouge (SWIR) et au visible et proche infra-rouge (VIS-NIR). Chaque tête est constituée d'une matrice CCD placée derrière deux roues entraînées par un moteur. L'une porte les filtres et

l'autre, les analyseurs et l'obturateur (c.f. figure 3). Il a été développé au LOA entre 2003 et 2008 et a participé à 3 campagnes aéroportées (c.f. tableau 1). Il dispose d'une quinzaine de canaux spectraux répartis entre 440 à 2200 nm. Dans la suite, j'appellerai « mesures polarisés », les mesures effectuées avec un analyseur placé devant le détecteur et « luminance totale calculée », celle qui est recalculée à partir des 3 mesures polarisées. L'instrument effectue également des mesures de la luminance totale sans analyseur dites « full ». Les caractéristiques techniques détaillées d'OSIRIS sont disponibles dans Auriol et al. (2008).



**Figure 3.** Plan de la mécanique de l'instrument OSIRIS

Durant ma thèse j'ai également travaillé sur l'instrument aéroporté MICROPOL, un instrument plus simple, monodirectionnel, composé de 15 cavités optiques séparées (3 voies polarisées pour un canal spectral donné) et fournissant la mesure des luminances totales et polarisées dans 5 canaux de 490 à 2200 nm. Cet instrument a été développé dans les années 2000 (Waquet, thèse, 2005).

Les caractéristiques d'OSIRIS sont proches de celle de POLDER en terme de précision radiométrique. Pour POLDER, la précision en terme de bruit radiométrique est meilleure que 0.001 en luminance polarisée et est de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-4}$  en luminance totale pour des scènes sans nuage (Fougnie et al., 2007). Celles-ci sont environ 3 fois plus fortes pour des scènes nuageuses. L'erreur sur le taux de polarisation ne dépasse pas 2% et dépend fortement du type de scène (Fougnie, communication personnelle). Les erreurs liées à l'étalonnage absolu de l'instrument ont été estimées à 2%. Dans le cas d'OSIRIS, les erreurs sur l'étalonnage absolu sont sensiblement plus importantes dans le moyen-infrarouge. Je reviendrai sur l'importance de l'étalonnage absolu dans la suite et sur l'ensemble des postes à contrôler dans le cadre de la caractérisation d'un instrument tel que POLDER. J'insiste ci-après sur l'importance de la précision de la mesure de la polarisation qui a conduit une partie de la communauté des chercheurs et d'ingénieurs de mon domaine à développer et à imaginer des polarimètres basés sur de concepts différents de celui de POLDER.

### *L'instrument RSP*

L'instrument aéroporté RSP a participé à de nombreuses campagnes aéroportées et a permis d'obtenir des mesures polarisées, directionnelles sur une gamme spectrale étendue au moyen-infrarouge (410-2200 nm). Durant mon séjour postdoctoral à NASA GISS, j'ai

travaillé sur l'analyse des mesures obtenus par cet instrument durant 3 campagnes de mesures (c.f. tableau 1). RSP est la maquette du polarimètre spatial APS (Aerosol Polarimeter Sensor) de la NASA, dont le lancement réalisé en 2011 a malheureusement échoué.

L'instrument RSP propose un concept permettant d'effectuer une mesure dite « instantanée » de la polarisation. Cela lui confère une grande plus précision sur la mesure du taux de polarisation. Un prisme de Wollaston transforme un faisceau de lumière en deux faisceaux de directions différentes (séparation angulaire et donc spatiale), et de polarisations linéaires orthogonales entre elles. C'est donc un analyseur (double). Les mesures sont effectuées avec un télescope réfracteur qui définit le champ de vue de l'instrument et permet d'obtenir un faisceau collimaté, éclairant les prismes. Un premier prisme est orienté de façon à mesurer les composantes orthogonales de la polarisation correspondant à des valeurs de  $\alpha$  (c. f. équation 7) égale à  $0^\circ$  et  $90^\circ$ , fournissant  $I$  et  $Q$ ,

$$\begin{aligned} I &= (I(0,0) + I(90,0))/2 \\ Q &= (I(0,0) - I(90,0))/2 \end{aligned} \tag{9}$$

Un deuxième télescope associé à un prisme orienté différemment permet de mesurer les composantes de la polarisation orientées à  $45^\circ$  et  $135^\circ$  ( $U$  et  $I$ ). Le paramètre  $I$  est donc mesuré deux fois par des détecteurs différents. Un système embarqué permet de contrôler l'étalonnage inter-voie sur  $I$  et de ne pas introduire d'erreurs sur la mesure de  $Q$  et  $U$ . RSP permet d'obtenir une précision de 0.2% sur le taux de polarisation mesuré (Cairns et al., 1999). Un séparateur de faisceau est utilisé pour effectuer des mesures simultanées dans 3 bandes spectrales par télescope. Il y au total 6 télescopes ; 3 mesurent  $I$  et  $Q$  dans 9 bandes spectrales et 3 autres mesurent  $I$  et  $U$  dans les mêmes bandes. La mesure de la polarisation est donc réalisée de façon instantanée dans les 9 canaux spectraux (410, 470, 555, 670, 865, 960, 1590, 1880 et 2250 nm). L'instrument est un radiomètre à balayage et peut scanner selon l'axe de l'avion ou perpendiculairement à celui-ci (uniquement selon la trace du satellite pour la version spatiale). La gamme angulaire échantillonnée est large (+/- 60° du nadir) et associé à une résolution angulaire fine. Grâce au mouvement du satellite ou de l'avion, la cible à la surface de la terre peut être observée selon un grand nombre de géométrie d'observation comme pour l'instrument POLDER.

### *Autres concepts instrumentaux*

De nouveaux instruments ont également été développés pour mesurer la polarisation, utilisant des techniques propres à l'optique anisotropique. Ces méthodes alternatives consistent à moduler (ou à faire tourner) l'état de polarisation linéaire de l'onde incidente, à l'aide d'un dispositif introduisant un retard de phase (exemple : un cristal biréfringent). On mesure ensuite l'état de polarisation obtenu à l'aide d'un analyseur fixe (c.f. équation 7). Comme l'analyseur est fixe, il n'y a pas d'erreurs liées à un éventuel recalage des mesures polarisées. Dans le cas du spectro-polarimètre SPEX, développé par l'agence spatiale hollandaise (SRON), on obtient un spectre en intensité qui contient intrinsèquement les informations sur l'état de polarisation de l'onde incidente. Il convient ensuite de démoduler ce spectre pour en déduire les paramètres de Stokes. Dans le cas de l'instrument SPEX, la modulation est spectrale ; une lame quart d'onde et un dispositif, permettant d'introduire un retard de phase dépendant de la longueur d'onde, sont utilisés pour moduler l'état de polarisation du rayonnement incident. Ce système suivi d'un analyseur et d'un spectromètre permet d'obtenir les paramètres de Stokes avec une résolution spectrale de 20 nm, pour  $Q$  et

$U$ , sur une gamme spectrale s'étendant de 400 à 800 nm et pour une précision annoncée de  $0.001+0.005\times P$ , avec  $P$  le taux de polarisation linéaire (Snik et al., 2009). Cet instrument a été sélectionné pour participer à la prochaine mission spatiale de la NASA intitulée, PACE<sup>4</sup>, prévue pour 2022-2023. Dans sa version spatiale (SPEXone), cet instrument effectuera de mesures pour une fauchée étroite et permettra d'observer une cible selon 5 géométries de visée différentes. La nouvelle version de l'instrument MISR, l'instrument MSPI (NASA, JPL), inclut également des mesures polarisées. La méthode utilise une modulation de type « temporelle » et est basée sur l'utilisation de dispositifs exploitant l'effet photo élastique (i.e. modification de la biréfringence d'un matériaux par contrainte mécanique). Deux analyseurs fixes croisés à 0 et 45° permettent de mesurer les paramètres  $I$ ,  $Q$  et  $U$ . L'instrument est un imageur comme POLDER et permet d'acquérir des mesures spectrales et directionnelles et polarisée avec une précision de 0.5% sur le taux de polarisation (Diner et al., 2007). Cet instrument a été testé dans sa version aéroportée (airMSPI) dans plusieurs campagnes aéroportées et est proposé pour de futures missions spatiales américaines. Enfin, l'instrument HARP (Hyper-Angular Rainbow Polarimeter, NASA GODDARD) est un imageur grand champ comme POLDER, effectuant des mesures spectrales (440-865 nm), mais qui utilise 3 analyseurs fixes (i.e. un système de prisme est utilisé pour séparer le faisceaux avant analyse). Cet instrument ne mesure pas la polarisation par biréfringence mais permet d'acquérir des mesures avec une haute résolution angulaire (entre 20 et 60 visées en fonction du canal) pour la caractérisation des arcs nuageux. Cet instrument devrait également faire partie de la mission PACE qui sera donc en orbite en même temps que 3MI. Notons enfin, que l'agence spatiale chinoise compte également envoyer dans l'espace des instruments de type POLDER et APS dans les prochaines années.

## 2.2. Caractérisation instrumentale.

Durant ma carrière, J'ai principalement travaillé avec les mesures de l'instrument POLDER, développé par le LOA et le CNES, dans ses versions aéroportée et spatiales, et celles de l'instrument RSP de la NASA. J'ai également travaillé sur le développement d'une version prototype de l'instrument POLDER, étendue dans le moyen-infrarouge, préfigurant le futur instrument 3MI de l'ESA. J'ai tout d'abord travaillé sur une version monodirectionnelle de cet instrument durant ma thèse, l'instrument MICROPOL. J'ai ensuite participé à la caractérisation de la maquette aéroportée de 3MI, l'instrument OSIRIS. Dans la suite, je fais le bilan de mes activités instrumentales et des campagnes aéroportées sur lesquelles j'ai travaillé. Le tableau 1, donné à la fin de ce chapitre, résume les caractéristiques des campagnes. Je me concentre sur l'instrument OSIRIS car j'ai été le responsable scientifique de cet instrument lors de la campagne AEROCLO-sA, réalisée en Namibie en 2017. Les activités autour de cet instrument représentent également une part importante de mes activités d'encadrement de ces dernières années.

Durant mes travaux de thèse, j'ai participé à l'étalonnage de MICROPOL en énergie et en polarisation. C'est un instrument monocapteur, disposant de 15 cavités optiques indépendantes. J'ai participé à la caractérisation complète de cet instrument (étalonnage absolu, contrôle de la mesure du taux de polarisation<sup>5</sup>, linéarité des détecteurs, alignement des 15 cavités optiques de l'instrument et détermination du bruit radiométrique. Ce travail

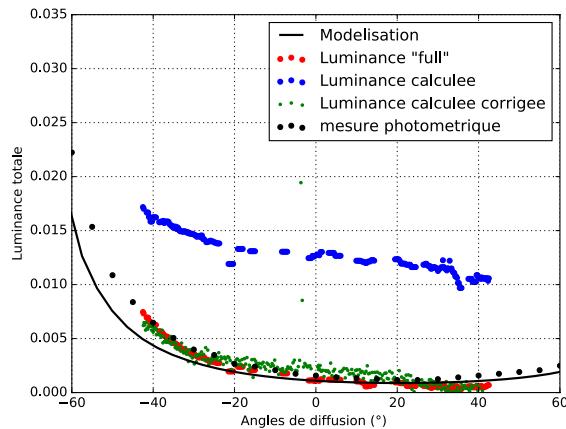
---

<sup>4</sup> PACE : Phytoplankton Aerosol Cloud & ocean Ecosystems

<sup>5</sup> Un système optique, composé de 2 lames de verre inclinées, a été développé au LOA pour contrôler le taux de polarisation linéaire mesuré par un polarimètre. Le rayonnement se polarise par réflexion mais aussi par transmission à travers un dioptrre. La modification de l'angle entre les 2 lames permet d'ajuster le taux de polarisation linéaire par transmission avec une précision de 0,2%.

en laboratoire m'a permis de me familiariser avec les principales sources d'erreur associées à la mesure d'un polarimètre : la précision sur l'étalonnage absolu (liée aux qualités radiométriques de la sphère d'étalonnage utilisée), le bruit radiométrique, et la précision sur la mesure de la polarisation. J'expliquerai dans le chapitre 2.5.3 comme l'ensemble de ces erreurs peut être prise en compte afin d'estimer les incertitudes associés aux paramètres inversés.

J'ai continué cette activité de caractérisation instrumentale dans le cadre du stage de master de Fanny Peers que j'ai encadré en 2012. Le stage portait sur la caractérisation instrumentale de l'instrument OSIRIS. L'étude d'un tel instrument se complexifie sensiblement avec l'utilisation d'une matrice CCD et d'une optique grand champ. L'étalonnage de la matrice CDD est réalisé en deux étapes : un étalonnage absolu au centre de la matrice et un étalonnage relatif inter-pixel, permettant de généraliser l'étalonnage absolu à l'ensemble de l'image. Le modèle radiométrique simple de l'instrument POLDER a été utilisé (c. f. équations 6 et 8). Afin de contrôler le résultat des premières caractérisations effectuées en laboratoire, nous avons comparé les mesures de l'instrument OSIRIS avec celles fournies par un photomètre de référence du réseau PHOTONS/AERONET, effectuant des mesures spectrale et polarisé (440-1600 nm). Des expérimentations ont été réalisées sur la station instrumentée du LOA (visées du ciel). Les résultats ont montré un bon accord entre les mesures photométriques et celles d'OSIRIS dans le visible, permettant une première validation de la mesure directionnelle d'OSIRIS. Un résultat important du stage est la mise en évidence d'un défaut de conception de l'instrument pour la mesure dans le moyen-infrarouge (c. f. figure 4). La mesure du courant d'obscurité dans le SWIR dépendait des filtres et des analyseurs placés devant le détecteur. Cela a conduit les ingénieurs du laboratoire à modifier l'instrument. Des obturateurs réfléchissants (miroirs en or), typiquement utilisés pour des radiomètres infrarouges, ont été montés sur OSIRIS pour la mesure du courant d'obscurité. Les roues porte-filtres et porte analyseurs-obturateur ont également été permutes. Ces modifications ont permis de résoudre le problème. L'hypothèse principale avancée est une sensibilité du détecteur SWIR à l'émission de l'obturateur initial (une plaque anodisée).

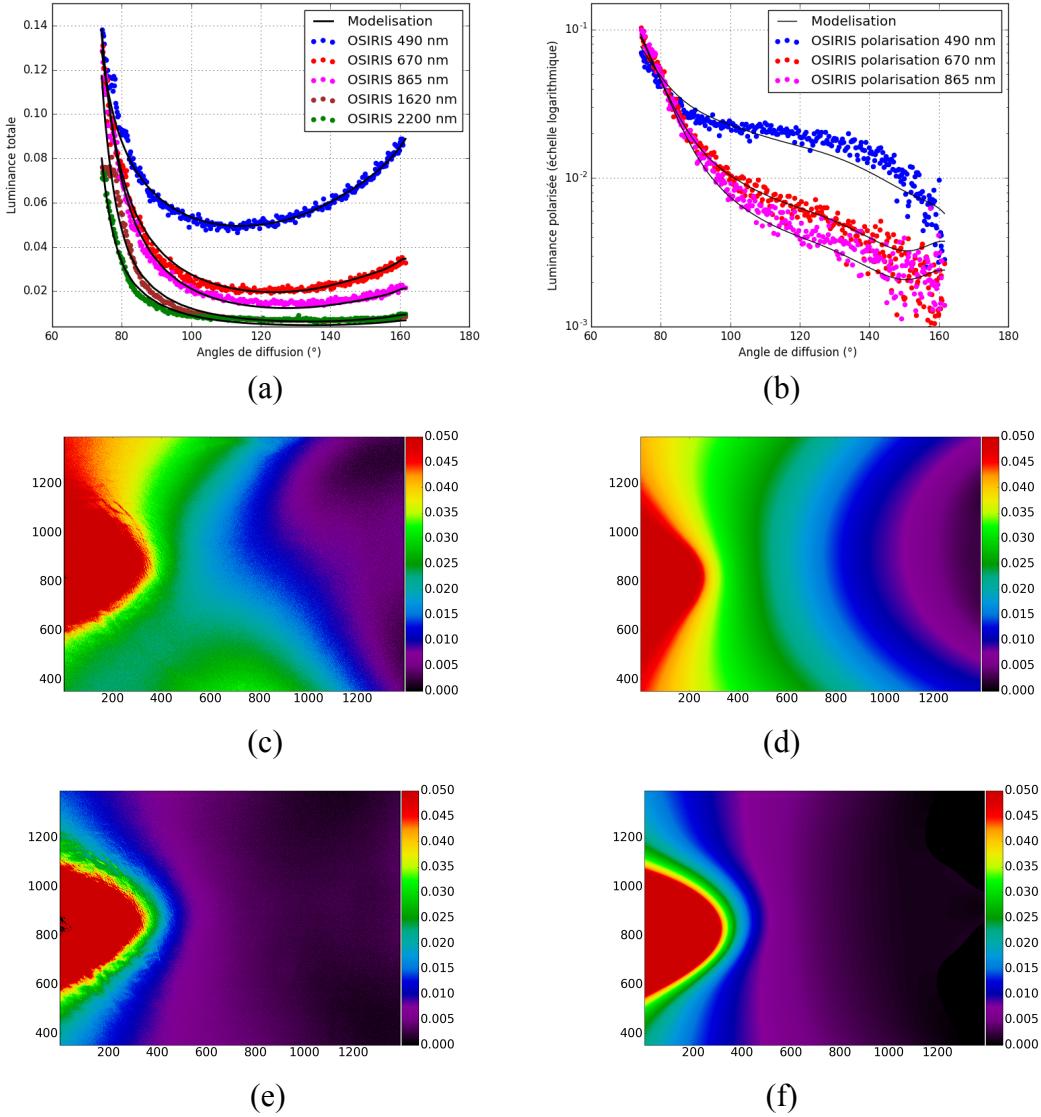


**Figure 4.** Luminance totale mesurée par OSIRIS à 1620 nm sur le toit du laboratoire (2003) pour une visée du ciel (luminance descendante). La figure illustre le problème de la mesure du courant de fuite dans le SWIR pour le calcul de la luminance totale. (Source : rapport de stage de master de Fanny Peers).

Durant mon post-doctorat à NASA GISS en 2006-2007, j'ai mis en évidence un problème d'étalonnage affectant les mesures de l'instrument RSP (c.f. Appendix C dans

Waquet et al., 2009a). Les travaux de l'équipe ont permis de corriger ce défaut en utilisant des cibles géophysiques pour contrôler l'étalonnage (exemple : utilisation du glitter sur l'océan). Les travaux menés par le CNES sur l'instrument POLDER-3 ont montré l'importance de disposer d'un suivi temporel de l'étalonnage d'un instrument. Des dérives de l'étalonnage ont été observées sur les 8 années de fonctionnement de POLDER/PARASOL (de l'ordre de 10% à 490 nm) et ont été prises en compte lors du retraitement. Un problème dans la correction du courant d'obscurité a été observé et a permis d'expliquer l'origine d'un biais résiduel (de +0.03) sur l'épaisseur optique en aérosol restituée par POLDER (Tanré et al., 2011).

Mes premières analyses des données aéroportées acquises par OSIRIS ont porté sur la modélisation de signaux acquis au-dessus de la mer Méditerranée en ciel clair (campagnes ChArMEx et CALIOSIRIS, c.f. tableau 1). Les scènes échantillonnées présentaient des glitters. Le glitter ou sunglint correspond à réflexion spéculaire du soleil sur les facettes des vagues. C'est un signal très directionnel qui peut être modélisé précisément (Cox et Munck 1954, Bréon et Henriot, 2006). Pour la campagne ChArMEx, une première modélisation du glitter a montré une incohérence entre les systèmes optiques VIS-NIR et SWIR. L'origine du problème était mécanique (l'axe optique dans le SWIR était anormalement incliné) et une correction a pu être apportée. La figure 5 montre un exemple de mesures d'OSIRIS, acquises durant la campagne suivante, appelée CALIOSIRIS, et la modélisation associée à cette mesure. Les charges en aérosol étaient relativement faibles pour cette campagne. L'objectif était ici de vérifier la cohérence des mesures de l'instrument à l'aide de la théorie. Ces résultats ont confirmé les observations acquises depuis la station toit du laboratoire ; les mesures polarisées à 670 et 865 nm et les mesures directionnelles en intensité peuvent être reproduites ; par contre, des écarts notables entre simulations et mesures sont observés en polarisation à 490 nm. Une dissymétrie est notamment observée sur l'image polarisée à 490 nm (figure 5-c) qui ne peut être expliquée par des effets géophysiques. Cet effet pourrait être imputable à de la lumière parasite. Je reviendrai plus tard sur ce problème. Les luminances polarisées mesurées à 1.6 et 2.2 microns étaient particulièrement faibles, mais qualitativement, leur comportement était en accord avec la théorie. Cette première étape de caractérisation et d'analyse m'a convaincu, que l'instrument OSIRIS, bien que perfectible, disposait de suffisamment de canaux fiables pour participer à d'autres campagnes de mesures visant à contribuer l'étude des aérosols et des nuages.



**Figure 5.** (a) Mesures d'OSIRIS en luminance totale à 490, 670, 865, 1620 et 2200 en fonction de l'angle de diffusion et modélisation associée. Mesures obtenues lors de la campagne CALIOSIRIS réalisée en octobre 2013 en mer Méditerranée. Les paramètres décrivant l'atmosphère et la surface ont été inversés simultanément à l'aide d'une méthode d'estimation optimale (Waquet et al., 2009a). (b) Même figure pour la luminance polarisée mesurée par OSIRIS (avec une échelle logarithmique pour l'axe des ordonnées). (c) image acquise par OSIRIS et (d) modélisée après inversion en luminance polarisée à 490 nm. (e) et (f) figures identiques mais pour 865 nm.

La caractérisation en laboratoire d'OSIRIS s'est poursuivie dans le cadre de la préparation de 3MI et de l'analyse de la campagne aéroportée AEROCLO-sA (c. f. tableau 1). J'analyse actuellement les mesures de cet instrument avec l'aide d'un post-doctorant que je supervise (Aurélien Chauvigné). Un modèle radiométrique complet<sup>6</sup> (Eq. 10) est en cours de développement pour OSIRIS (travaux effectués par les ingénieurs du LOA et travaux de master de Mohamed S. Djellali). Le modèle prend en compte la polarisation induite par l'optique (polarisation par transmission à travers les dioptres), l'efficacité réelle des analyseurs et leur orientation exacte (celle-ci n'est pas nécessairement rigoureusement égale à 60°).

$$CN_{ij}^{ka} = t_{exp}^k \cdot A_{exp}^{-1} \cdot g_{ij}^{ka} \cdot P_k(\theta_{ij}) \cdot \left[ \begin{array}{l} \left( 1 + \eta^k \epsilon^k (\theta_{ij}) \cos 2(\varphi_{ij} - \alpha_{ka}) \right) \cdot I^f \\ + \left( \epsilon^k (\theta_{ij}) + \eta^k \cdot \cos 2(\varphi_{ij} - \alpha_{ka}) \right) \cdot Q^f \\ + (\eta^k \cdot \sin 2(\varphi_{ij} - \alpha_{ka})) \cdot U^f \end{array} \right] + SL_{ij}^{ka} + CN_{0,ij}^{ka} \quad (10)$$

avec  $k$  et  $a$  les indices représentant respectivement la bande spectrale et l'analyseur,  $i$  et  $j$  identifient un pixel sur la matrice,  $A$  correspond au coefficient d'étalonnage absolu,  $P(\theta)$  et  $g$  correspondent respectivement à la partie basse fréquence de la transmission (liée à la transmission de l'optique) et à un facteur de correction pour la haute fréquence,  $\theta$ ,  $\varphi$ ,  $\alpha$ ,  $\eta$ ,  $\epsilon(\theta)$  correspondent respectivement à l'angle zénithal de visée, l'angle azimutal de visée, l'orientation des analyseurs et l'efficacité des analyseurs.  $SL$  correspond à la contribution de la lumière parasite et  $CN_0$  au courant d'obscurité.

Les paramètres du modèle ont été restitués à partir de mesures effectuées en laboratoire. Ce travail est en cours et ce modèle n'est pas encore implémenté pour le traitement des données d'OSIRIS. Les activités de caractérisation et d'analyse du signal se poursuivent actuellement en parallèle au laboratoire.

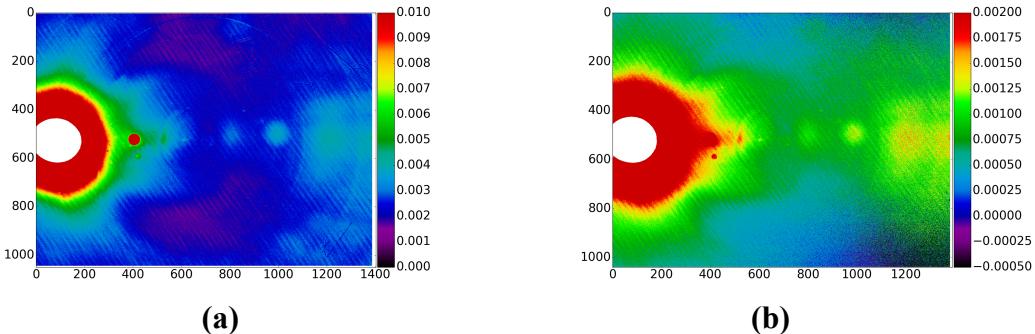
La lumière parasite (terme  $SL$  dans l'équation 10) est liée à l'utilisation d'une optique grand champ et d'une matrice de détecteurs. Des réflexions parasites se produisent sur les détecteurs puis sur l'optique (lors de la traversée des différents dioptres qui compose l'optique), redistribuant une partie de la lumière incidente sur la matrice (Laherrère et al., 1997). La lumière parasite sur OSIRIS a été mise en évidence en laboratoire (c. f. figure 6-a). A l'aide de ces caractérisations, j'ai estimé, avec l'aide d'un étudiant en thèse (Christian Matar), l'impact d'un type de lumière parasite<sup>7</sup>. Nous avons choisi une scène très contrastée

<sup>6</sup> On obtient ce type de modèle en étudiant chaque élément optique de l'instrument (analyseurs, optique, filtres) séparément et en lui attribuant une matrice de Müller. On calcule ensuite la matrice de Müller totale de l'instrument (i.e. matrice de Müller : matrice donnant la relation entre les paramètres de Stokes exprimés avant et après la traversée d'un système optique donné).

<sup>7</sup> Il existe différents types de lumière parasite. La lumière parasite de « type 1 » contamine les pixels proches (premières réflexions parasites). La lumière parasite de « type 2 » correspond à des réflexions multiples qui contaminent l'ensemble de la matrice (signal de fond plus faible mais potentiellement plus pénalisant pour les inversions). La méthode de correction pour le type 2 consiste à éclairer une partie de la matrice à l'aide d'une petite sphère d'étalonnage. On effectue des mesures pour temps d'intégration long, ce qui permet de révéler la lumière parasite. L'image de la sphère est alors typiquement saturée. Des mesures acquises pour un temps d'intégration court et la connaissance des deux temps d'intégration permettent d'estimer la quantité de lumière entrant dans l'instrument. On peut alors estimer des rapports de correction pour le type 2. La correction de type 1 nécessite de connaître la fonction de transfert de l'instrument (réponse de l'instrument à une impulsion lumineuse) et d'effectuer une déconvolution du signal mesuré par cette fonction.

présentant un glitter intense. La présence d'un glitter sur le bord de la matrice d'OSIRIS peut introduire une luminance polarisée additionnelle égale à  $1.5 \cdot 10^{-3}$  sur l'autre bord de la matrice (c. f. figure 6-b). Pour des scènes nuageuses homogènes, les effets sont plus faibles. Ce problème est, comme attendu, très dépendant de la scène et de son hétérogénéité. Ce problème de lumière parasite pourrait également expliquer les écarts résiduels entre mesures et modélisation à 490 nm (c. f. figures 5-c et 5-d). Il est toutefois difficile de conclure sur l'origine de ces biais, l'instrument n'étant pas encore complètement caractérisé (c.f. équation 10).

Le problème de la lumière parasite a été étudié et corrigé par le CNES pour les versions spatiales de POLDER. Ces effets ne sont pas, à l'heure actuelle, corrigés sur OSIRIS et devront faire l'objet d'études futures pour OSIRIS et pour le futur instrument 3MI de l'ESA. La mise en évidence des problèmes instrumentaux est une première étape, avant leur caractérisation complète, permettant de progresser dans la compréhension et l'analyse des signaux.



**Figure 6.** (a) Observation de la lumière parasite sur OSIRIS (à 865 nm) en laboratoire à l'aide d'une source de lumière. La quantité représentée est une luminance normalisée. Les mesures ont été acquises pour un temps d'intégration long. L'image de la source est saturée et on observe la création lumière parasite à différents endroits de la matrice (lumière parasite de type 2). On peut également observer des images fantômes et aussi un élargissement de la tâche associée à la source lumineuse (lumière parasite de type 1). (b) Calcul de l'impact de la lumière parasite de type 2 sur la luminance polarisée d'OSIRIS mesurée à 865 nm pour des mesures réelle avec glitter : différence entre la luminance polarisée calculée avant et après correction. La correction est valable sur la partie droite de l'image à distance de la tâche du glitter. Les stries sur les images sont dues à un défaut du détecteur VIS-NIR qui a été changé avant la campagne AEROCLO-sA.

### 2.3. Campagnes de mesures.

Afin d'atteindre mes objectifs de thèse, portant notamment sur l'étude des surfaces en polarisation, j'ai proposé de réaliser des vols à basse altitude pour minimiser les effets de l'atmosphère sur les mesures de réflectance des surfaces. Des allers-retours ont été effectués sur des axes de vol courts en modifiant la visée de l'instrument MICROPOL (monodirectionnel) afin de « créer » une information directionnelle, par nature indispensable à l'étude de la contribution radiative des surfaces. Durant ma thèse, j'ai réalisé des vols en région Nord pour l'étude des aérosols de pollution et des surfaces (Waquet et al., 2007, 2009b).

Un autre avantage de l'expérimentation aéroportée est la possibilité de réaliser des synergies instrumentales. Ainsi, j'ai également analysé les données acquises par MICROPOL pendant la campagne FRENCH, réalisée à bord de l'avion de recherche

français, le Falcon-20 de SAFIRE<sup>8</sup> et les mesures du lidar aéroporté LEANDRE (du LATMOS), également à bord du F-20. J'ai notamment publié un article portant sur l'étude des aérosols naturels en mer Méditerranée (poussières et aérosols marins). Un point intéressant de l'article porte sur une synergie des instruments passifs et actifs pour fournir l'évolution verticale de certaines propriétés des aérosols (Waquet et al., 2005). Les travaux menés sur les campagnes réalisées avec l'instrument RSP (MILAGRO, ALIVE) m'ont permis d'apprécier l'apport d'un photomètre aéroporté pour la validation des inversions réalisées avec un polarimètre. J'ai notamment travaillé avec les données du photomètre aéroporté de la NASA, l'AATS-14, mesurant l'épaisseur optique en aérosol dans de nombreux canaux (entre 0.35 et 2.1 microns). Durant la campagne MILAGRO, j'ai participé à l'élaboration de plans de vol, incluant des descentes en boucle permettant d'obtenir des profils verticaux de l'épaisseur optique et de l'extinction des aérosols.

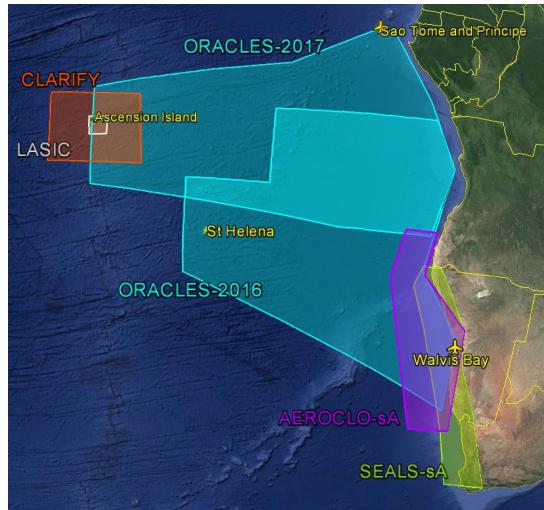
Une difficulté des mesures aéroportées porte sur le calcul de la géométrie d'observation qui doit prendre en compte l'attitude de l'avion (tangage, roulis, cap). Le problème est purement géométrique mais la précision avec laquelle on mesure ces paramètres, ainsi que la connaissance de la position de l'instrument par rapport à l'avion, entraînent systématiquement des imprécisions sur la géométrie d'observation. Des méthodes basées sur l'analyse de cibles géophysiques (glitter, arc-en-ciel) ou sur l'utilisation de traits de côtes sont utilisées pour affiner l'estimation de ces paramètres. Cela vaut spécialement pour l'instrument OSIRIS qui dispose de deux systèmes optiques séparés, ce qui nécessite une collocalisation des mesures.

L'expérience acquise durant ces campagnes m'a permis de devenir responsable des instruments de télédétection du LOA dans le cadre du projet AEROCLO-sA. Ce projet a permis de réaliser une campagne intensive de terrain l'été dernier (août-septembre 2017) en Namibie. Cette campagne impliquait des moyens sols et des moyens aéroportés. Le LOA a déployé sur le F-20, l'instrument OSIRIS, le photomètre aéroporté PLASMA, ainsi que les radiomètres MICROPOL-UV et MINIMIR. Le F-20 était également équipé du lidar LNG (LATMOS), des fluxmètres mesurant les flux montant et descendant (dans le visible et l'infrarouge thermique), un radiomètre infrarouge (CLIMAT) ainsi que des instruments de mesures in situ (distribution en taille des aérosols) et des dropsondes (mesures de température, pression, humidité). Ce projet rassemble les chercheurs de plusieurs laboratoires français : LISA, LATMOS, LA, IRCELYON et LOA et dispose d'un financement ANR<sup>9</sup>. Un programme de recherche international s'est mis en place en partenariat avec le Met Office anglais (projet CLARIFY) et la NASA (projet ORACLES) pour l'étude des aérosols et des nuages dans l'Atlantique-sud-est. La figure 7 montre les zones couvertes par les 3 campagnes.

---

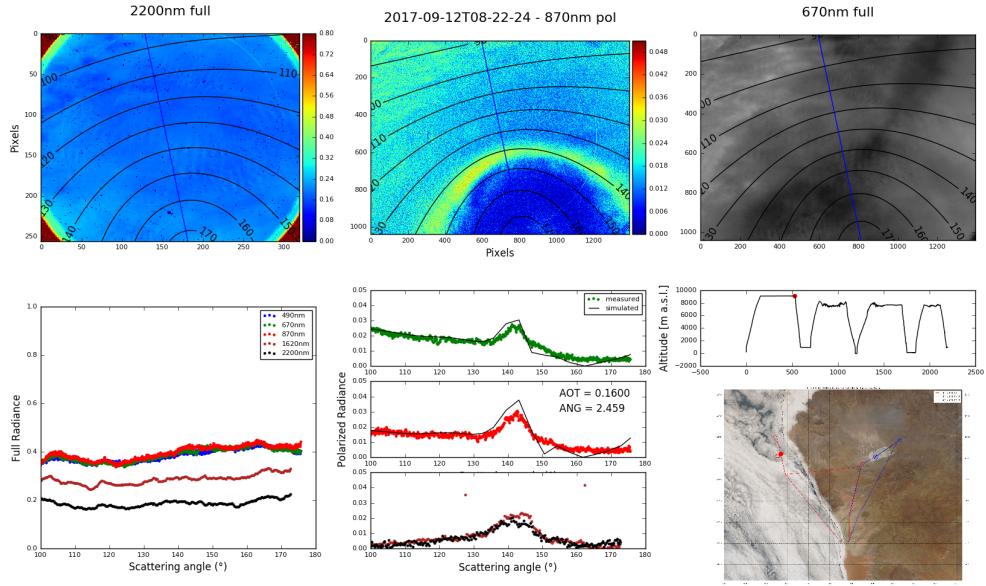
<sup>8</sup> SAFIRE : Service des avions français instrumentés pour la recherche en environnement

<sup>9</sup> ANR : Agence Nationale de la Recherche.



**Figure 7.** Zones couvertes dans l'Atlantique sud par les 3 campagnes aéroportées : campagne AEROCLO-sA (France), basée à Walvis Bay en Namibie, vols réalisés fin août et début septembre 2017 ; campagne ORACLES (NASA), basée sur Walvis Bay, en août 2016, et sur l'île de Sao Tomé en août 2017 et campagne CLARIFY (Royaume-Uni), basée sur l'île de l'Ascension, réalisée en août 2017. Source : Jens Redemann, projet ORACLES (NASA).

L'un des objectifs de cette mission porte sur l'étude des propriétés des aérosols localisés au-dessus des nuages. Depuis la surface, les photomètres ne peuvent effectuer des mesures en présence de nuages. La participation du photomètre aéroporté PLASMA, pour des études de validation, constituait un point important du projet. Cet instrument suit le soleil malgré les déplacements de l'avion et mesure l'épaisseur optique au-dessus de l'avion. L'instrument MICROPOL a subit des modifications pour effectuer des mesures dans l'ultraviolet, pour compléter la gamme spectrale couverte par les instruments du F-20. Des descendantes en « hippodrome » dans les panaches de fumée, à des vitesses de chute contrôlées, ont été réalisées, afin de permettre des mesures simultanées d'épaisseur optique en aérosol avec PLASMA et des mesures flux. Des parties de la descente ont été réalisées à tangage et roulis nuls afin d'effectuer des mesures de flux exploitables (celles-ci s'effectuant à l'horizontale). Des tronçons de vol ont été également effectués à haute altitude (8 km) et à basse altitude (au ras des nuages) au-dessus des mêmes axes de vol, afin de comparer les inversions d'OSIRIS, aux mesures de PLASMA. L'objectif est de valider les estimations de forçage, de taux d'échauffement et des propriétés des aérosols inversées à partir de la synergie polarimètre-lidar. Malgré des difficultés importantes, la campagne a finalement permis d'obtenir 10 vols scientifiquement exploitables avec des charges en feux de biomasse importantes et des survols de scènes brillantes (nuage et désert). La figure 8 montre un exemple des mesures acquises par OSIRIS lors du vol du 12 septembre 2017, pour un événement de transport d'aérosols au-dessus des nuages avec les plans de vol reportés sur une image satellite. Les mesures sont représentatives de ce type de scènes. Je reviendrai sur l'analyse des effets observés dans le chapitre « aérosols au-dessus des nuages ».



**Figure 8.** Exemple de mesures acquises par OSIRIS pour de scènes de type « aérosols au-dessus des nuages » et plan de vol associé. De gauche à droite (en haut) : image en luminance totale à 2200 nm, image en polarisation à 870 nm, image en luminance totale à 670 nm. De gauche à droite (en bas), luminance totale spectrale (490, 670, 865, 1620 et 2200 nm) mesurée dans le plan principal en fonction de l’angle de diffusion ; pour la luminance polarisée (de haut en bas), 670 nm, (en vert), 865 nm (en rouge), 1620 nm (marron) et à 2200 nm (en noir), altitude de l’avion en fonction de l’heure, position de la mesure (point rouge) et plans de vol tracés sur une image satellite VIIRS (NASA), pour le 12 septembre 2017. Dans le SWIR, pour des raisons techniques (sphère d’étalonnage du LOA), l’étalonnage n’est pas, à heure actuelle, effectué sur les bords de l’image (image en haut à gauche). Source : Aurélien Chauvigné (post-doctorant).

| Campagnes                | Localisation/date  | Objet de l'étude et/ou travaux effectués   | Instruments (avion)   | Publications   |
|--------------------------|--|--|---|--|
| FRENCH <sup>10</sup>     | Mer Méditerranée<br>Oct. 2001  | Cirrus et aérosols naturels<br>Analyse des données   | MICROPOL/<br>Lidar<br>LEANDRE<br>(F-20)   | Poussières et aérosols marins en méditerranée<br>Waquet et al., (2005)<br><br>Propriétés radiatives des surfaces végétales en polarisation et modélisation<br>(Waquet et al 2009b)<br>Inversion des aérosols au-dessus des terres en région NPC<br>(Waquet et al., 2007) |
| Campagne en région Nord  | Nord de la France<br>(2002-2005)   | Surface et aérosols de pollution<br>Réalisation des plans de vols<br>Analyse   | MICROPOL<br>(avion de tourisme)   |  |
| Campagne en Californie   | Désert du Mojave,<br>Californie<br>(Oct. 2013)   | Feux de biomasse particulièrement importants<br>Analyse  | RSP<br>(Cessna 310)<br>et lidar CPL<br>(ER-2)   | Waquet et al. (2009a)  |
| ALIVE <sup>11</sup>      | Grandes plaines,<br>Oklahoma, USA<br>(Sept. 2005)  | Surface et aérosol<br>(charges faibles en aérosol)<br>validation lidar<br>Analyse  | RSP<br>et AATS-14<br>(J-31)   | Waquet et al. (2009a)  |
| MILAGRO <sup>12</sup>    | Ville de Mexico,<br>Gulf du Mexique<br>(Mars 2006)   | Etude de la pollution sur Mexico et des émissions de feux de biomasse (source, transformation et effets).<br>Couleur de l'eau<br>Responsable des mesures de RSP sur la deuxième partie de la campagne / analyse  | RSP et AATS-14<br>(J-31)  | Inversion des aérosols au-dessus de la ville de Mexico<br>Cairns et al., (2009)<br>Évaluation d'un modèle d'hydrosol Chowdhary et al., (2013)  |
| ChArMEx <sup>13</sup>    | Basin Méditerranéen<br>(été 2013)  | Etude environnementale dans le bassin Méditerranéen.<br>Charges en poussières faibles à modérées et cirrus.  | OSIRIS, lidar<br>LEANDRE<br>(F-20)  | Mallet et al., (2016)  |
| CALIOSIRIS               | Méditerranée/<br>Océan Atlantique<br>(Oct. 2004)   | Vols à visée technologique (scène océanique, charge en aérosol faible) / validation lidar  | OSIRIS, lidar<br>LEANDRE<br>(F-20)  | /  |
| AEROCLO-sA <sup>14</sup> | Walvis Bay,<br>Namibie, et océan Atlantique<br>(10 vols août-sept. 2017)<br>et 2 vols tests<br>(Méditerranée, juillet 2017). | Etudes des propriétés des aérosols et des nuages en Namibie. Effets des aérosols sur les nuages et impacts radiatifs.<br>Charges en feux de biomasse considérables, stratocumulus et scènes désertiques.<br>Responsable scientifique des instruments LOA | OSIRIS,<br>PLASMA,<br>MICROPOL-UV,<br>MINIMIR,<br>Fluxmètres,<br>Radiomètre infrarouge<br>CLIMAT et lidar LNG<br>(F-20) | La météo<br>(Formenti, 2017)   |

**Tableau 1 :** Campagnes de mesures aéroportées, instruments utilisés et publications associées.

<sup>10</sup> FRENCH : Field Radiation Experiment Natural Cirrus and High Cloud

<sup>11</sup> ALIVE : Aerosol Lidar Validation Experiment

<sup>12</sup> MILAGRO : The Megacity Initiative: Local and Global Research Observations

<sup>13</sup> ChArMEx : The Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment.

<sup>14</sup> AEROCLO-sA : AErosol RadiatiOn and CLOuds in southern Africa

## 2.4. Transfert radiatif

### 2.4.1. Codes de transfert radiatif.

J'ai principalement travaillé avec le code des ordres successifs (OS) qui est le code de transfert radiatif développé au LOA. Ce code permet de prendre en compte la diffusion multiple dans l'atmosphère et les interactions multiple entre l'atmosphère et la surface. Il est particulièrement rapide pour simuler la polarisation en atmosphère claire mais ne prend pas en compte l'absorption par les gaz. J'ai également utilisé le code de l'adding-doubling, notamment durant mon post-doc à GISS. Ce code est basé sur une approche différente, qui permet des temps de calcul plus faibles pour le calcul des luminances totales en atmosphère nuageuse. Ces deux codes prennent en compte la polarisation. Mes travaux récents, menés avec les étudiants en thèse, m'ont également conduit à utiliser le code GAME permettant d'intégrer spectralement les luminances et de prendre compte l'absorption par les gaz pour le calcul des flux sur le spectre solaire et dans l'infrarouge thermique. Le calcul des luminances dans ce code est basé sur une troisième technique de résolution de l'équation du transfert radiatif, la méthode des ordonnées discrètes. Les temps de calcul pour les ordonnées discrètes sont indépendants de l'épaisseur optique mais cette méthode (dans la version implémentée dans GAME) ne prend pas en compte la polarisation. Pour ces codes dits « plan parallèle », l'atmosphère est découpée en couches parallèles homogènes. Mes travaux m'ont conduit à m'intéresser aux calculs de transfert radiatif réalisés à l'aide de code 3D tel que 3DMCPOL<sup>15</sup> permettant la prise en compte d'effets tridimensionnels en atmosphère nuageuse (effets d'ombrages, de surbrillance, interactions entre colonnes atmosphériques) et des effets de résolution spatiale. Ces effets peuvent être importants dans le cadre d'une atmosphère nuageuse hétérogène, et je reviendrai sur ces aspects dans la partie projet.

Mon expérience acquise lors de mon séjour au GISS m'a également montré que l'exploitation des mesures d'un instrument mesurant très précisément la polarisation nécessite également une modélisation plus fine des interactions radiatives entre la surface et l'atmosphère. Les effets de la couleur de l'eau en polarisation sont typiquement faibles et souvent négligés. Les travaux menés à GISS sur cette thématique ont montré que des effets existent en polarisation aux plus courtes longueurs d'onde du visible (< 500 nm). La méthode de l'adding-doubling a été utilisée pour ajouter une couche marine dans les calculs permettant de prendre en compte l'ensemble des interactions radiatives entre l'atmosphère et l'océan. Le problème est complexe, car il faut prendre en compte la transmission du rayonnement à travers une inter-surface de type rugueuse représentant une mer agitée. Il s'agit ensuite de définir un modèle d'hydrosol (i.e. particules marines) permettant de reproduire les observations d'un polarimètre tel que RSP. J'ai contribué à deux études sur cette thématique. Un modèle d'hydrosol a été proposé et évalué, notamment à l'aide des mesures acquises par RSP durant la campagne MILAGRO (Chowdhary et al., 2013). Des travaux engagés par des collègues français ont également permis d'ajouter une couche marine dans un code des OS (code OSOAA) afin de mener des études équivalents. Les résultats issus des deux codes ont été comparés (Chami et al., 2015).

---

<sup>15</sup> 3DMCPOL : 3D Monte-Carlo polarized radiative transfer model

#### 2.4.2. La troncature.

Dans les codes de transfert radiatif dits « rapides » (OS, adding-doubling), la fonction de phase est décomposée en polynôme de Legendre. La lumière est préférentiellement diffusée vers l'avant dans le cas de grosses particules (plusieurs microns), à cause du phénomène de diffraction. Pour les grosses particules, le nombre de termes dans la décomposition augmente et les temps de calcul également. La troncature est une approximation qui consiste à éliminer la pointe de diffusion avant observée sur la fonction de phase des aérosols et des particules nuageuses. Cette procédure permet d'obtenir une fonction de phase tronquée beaucoup plus lisse et donc de limiter l'ordre de la décomposition. Cette procédure est indispensable et réduit effectivement de temps de calcul. Toutefois, celle-ci introduit des biais sur le calcul de la luminance descendante et également sur luminance montante, en particulier dans le cas de particules sphériques présentant des arcs et des gloires. Mes travaux m'ont amené à améliorer le code des ordres successifs développé au LOA, en travaillant sur la procédure de troncature implémentée dans le code.

A partir de 2008, j'ai commencé à utiliser le code des ordres successifs pour simuler le rayonnement polarisé montant, généré par une couche d'aérosol localisée au-dessus d'un nuage d'eau liquide. La luminance polarisée ne dépend pas de l'épaisseur optique du nuage dans le cas de nuages épais, dû à un phénomène de saturation (atteint pour des épaisseurs optiques un peu supérieures à 3), et le code des OS reste donc bien adapté pour ce problème. Mes premiers calculs ont montré un écart entre calculs exacts et tronqués dans l'arc polarisé généré par les nuages d'eau liquide. Les effets de la troncature sur la polarisation ont été très peu discutés. J'ai travaillé avec Maurice Herman (Professeur émérite, LOA) sur ce problème. Dans l'approche historique, la lumière diffusée aux très petits angles de diffusion est assimilée à de la lumière transmise et le calcul du rayonnement diffusé vers l'espace est réalisée avec la fonction de phase tronquée (Potter, 1973). Dans la correction proposée, la pointe avant, normalement éliminée, est conservée et associée à une nouvelle fonction de phase, qui après normalisation, permet d'estimer de façon approchée les diffusions multiples perdues dans le cône de diffusion avant. Cela permet de modéliser correctement l'auréole solaire mesurée par un photomètre depuis la surface tout en utilisant l'approximation de la troncature. Pour le rayonnement montant, l'expression de la diffusion simple est modifiée afin de réduire les biais observés dans les arcs nuageux et dans les gloires mesurés depuis l'espace. Ces travaux ont initialement été présentés à l'atelier Trattoria<sup>16</sup>, organisé à Lille en 2015, et sont en cours de publication dans JQSRT (Waquet et Herman, 2018, en révision). La correction pour la luminance totale descendante et atteignant la surface consiste à ajouter au calcul tronqué le terme :

$$L_{(n)}^{av}(\Theta) = \sum_{n=1}^{ND} \frac{1}{n!} \left( \frac{A\tau_d^*}{\mu_s} \right)^n \frac{p_{(n)}^{av}(\Theta)}{4} \quad (11)$$

avec

$$p_{(n)}^{av}(\Theta) = \sum_{l=0} P_l(\cos \Theta) \quad \text{et} \quad \beta_{(n),l}^{av} = (\beta_l^{av})^n / (2l+1)^{n-1} \quad (12)$$

et

$$A = \frac{1}{4\pi} \iint (p^{ex}(\Theta) - p^{ecr}(\Theta)) d\omega \quad (13)$$

---

<sup>16</sup> Trattoria 2015: Transfert Radiatif dans les ATmosphères Terrestres pour les ObseRvations spatIAles.

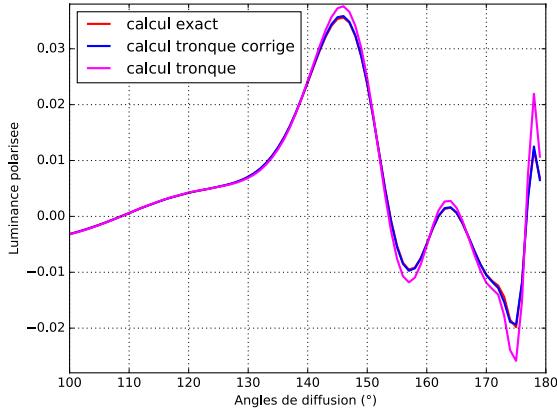
avec  $L_n^{av}$  la luminance avant calculée dans la pointe avant et  $n$  l'ordre de la diffusion,  $\Theta$  l'angle de diffusion,  $A$  le coefficient de troncature,  $\tau_d^*$  l'épaisseur optique de diffusion et  $\mu_s$  le cosinus de l'angle zénithal solaire et  $P_n^{av}$  est la fonction de phase permettant de calculer les diffusions dans la pointe avant d'ordre  $n$ . Celle-ci correspond à la probabilité qu'un photon soit diffusé  $n$  fois dans la pointe avant, avant d'atteindre le sol.  $P_l$  est un polynôme de Legendre et  $\beta_{(n)}^{av}$  un coefficient de Legendre calculé pour la fonction de phase avant d'ordre  $n$ .  $P^{ex}$  est la fonction de phase exacte et  $P^{exr}$  la fonction de phase tronquée (avant normalisation) qui a été tronquée entre 0 et  $16^\circ$ .

La correction proposée converge après 5 à 6 diffusions (ND) pour des épaisseurs optiques inférieures à 2. Pour le rayonnement montant, la contribution de la diffusion simple générée par une couche d'atmosphère élémentaire d'épaisseur optique  $d\tau$ , localisée à une profondeur optique  $\tau$ , doit être modifiée de la façon suivante,

$$dL_1^{tr}(\tau, \vec{k}_v) = \frac{(1-A)d\tau}{4\mu_v} \left[ P^{tr}(\Theta)e^{-\tau M} + P^{av,tr}(\Theta)(e^{-\tau_{tr}M} - e^{-\tau M}) \right] \quad (14)$$

$\mu_v$  le cosinus de l'angle zénithal de visée,  $\vec{k}_v$  la direction de visée,  $P^{tr}$  la fonction de phase tronquée,  $\tau_{tr}$  l'épaisseur optique après troncature,  $P^{av,tr}$  une fonction résultant de la convolution de la fonction de phase tronquée par la fonction de phase avant ; celle-ci représente la probabilité qu'un photon soit diffusé une première fois dans la pointe avant puis sorte de la pointe avant en subissant une deuxième diffusion,  $M$  est la « masse d'air » avec  $M = 1/\mu_s + 1/\mu_v$ .

On intègre ensuite cette formule sur la colonne (sur l'ensemble des couches élémentaires) pour obtenir la contribution de la diffusion simple à la luminance calculée au niveau du satellite. En polarisation, le problème est plus complexe car il faut prendre en compte la direction de polarisation mais des équations équivalentes aux formules 11 et 14 peuvent être explicitées. La figure 9 montre un exemple de correction sur la luminance polarisée montante typiquement réfléchie par un nuage d'eau liquide de type stratocumulus. Les biais observés dans l'arc primaire ( $\Theta \approx 140^\circ$ ), si ils ne sont pas corrigés, affectent la précision avec laquelle on inverse l'épaisseur optique des poussières transportées au-dessus de nuages (20% d'erreur sur l'épaisseur optique des poussières inversée pour un biais de 7% sur l'amplitude de l'arc primaire, Waquet et al., 2013a). Les biais inversés dans l'arc secondaire ( $\Theta \approx 160^\circ$ ) et à proximité de la gloire vont principalement affecter la précision avec laquelle on inverse la distribution en taille des gouttelettes, ce qui peut limiter notre capacité à étudier l'effet des aérosols sur la microphysique des nuages. D'autres approches ont également été développées pour corriger les biais introduits par la troncature. L'originalité de ce travail est d'expliquer l'origine des biais observés et de proposer une correction des effets de la troncature sur le rayonnement polarisé, à la fois pour les rayonnements montant et descendant.



**Figure 9.** Luminance polarisée (à 865 nm) simulée au sommet de l’atmosphère pour un nuage de type stratocumulus (rayon effectif égal à 10 microns). Calcul exact (en rouge), calcul tronqué (en magenta) et calcul tronqué corrigé (en bleu).

#### 2.4.3. Modélisations approchées des interactions surface-atmosphère.

L’inversion des propriétés des aérosols à l’aide de mesures polarisées au-dessus des surfaces terrestres et des nuages m’a amené à utiliser et à proposer des approximations des calculs réalisés par les codes de transfert radiatif. La matrice de Müller permettant de décrire le rayonnement montant réfléchi par le système surface-atmosphère peut s’écrire de façon approchée,

$$\mathbf{R}^{Atm+Surf} = \mathbf{R}^{Atm} + t_+ \mathbf{R}^{Surf} t_- + [\mathbf{T}_+^d \mathbf{R}^{Surf} t_- + t_+ \mathbf{R}^{Surf} \mathbf{T}_-^d + \mathbf{T}_+^d \mathbf{R}^{Surf} \mathbf{T}_-^d] \quad (15)$$

où la dépendance à la longueur d’onde et à la géométrie d’observation a été omise par soucis de simplification.  $\mathbf{R}^{Atm}$  et  $\mathbf{R}^{Surf}$  sont respectivement les matrices de réflexion de l’atmosphère (seule) et de la surface.  $\mathbf{T}^d$  est la matrice de transmission diffuse de l’atmosphère et la quantité  $t_{-,+}$  représente les termes de transmission directe de l’atmosphère :

$$t_{-,+} = \exp\left[-\left(\frac{\beta\tau_{a,\lambda} + \alpha\tau_{r,\lambda}}{\mu_{s,v}}\right)\right] \quad (16)$$

avec  $\tau_{a,\lambda}$  et  $\tau_{r,\lambda}$  les épaisseurs optiques, respectivement, des aérosols et des molécules à une longueur d’onde donnée. Les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  sont des paramètres empiriques discutés ci-après, et qui valent l’unité dans le cas d’un calcul exact.

L’équation 15 néglige les réflexions multiples entre la surface et l’atmosphère. Cela est justifié pour la luminance polarisée qui peut être modélisée avec une bonne approximation en ne considérant qu’une seule réflexion sur la surface. Le premier terme du membre de droite de l’équation 15 ( $\mathbf{R}^{Atm}$ ) correspond à la contribution de l’atmosphère, sans interaction avec la surface, le second terme ( $t_+ \mathbf{R}^{Surf} t_-$ ) correspond à la contribution directe de la surface et le terme entre crochets correspond aux interactions diffuses (au moins une diffusion et une réflexion) entre la surface et l’atmosphère. Ces différents termes doivent être pris en compte pour une modélisation précise de la luminance polarisée émergeant du système terre-atmosphère.

Une approximation supplémentaire consiste à ne considérer dans le calcul que la contribution directe de la surface et celle de l'atmosphère (Deuzé et al., 2001) :

$$L_{p,\lambda}^{calc}(\mu_s, \mu_v, \varphi_s - \varphi_v) = L_p^{atm}(\mu_s, \mu_v, \varphi_s - \varphi_v) + t^* \mu_s R_p^{surf}(\mu_s, \mu_v, \varphi_s - \varphi_v) t_*^* \quad (17)$$

avec  $R_p^{surf}$  la réflectance polarisée de la surface,  $t_{-/+}^*$  des termes de transmission directe modifiés à l'aide des coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  (eq. 16). Ces coefficients sont ici inférieurs à l'unité ( $\alpha=0.9$ ,  $0.3<\beta<0.6$ ). Les paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  sont introduits pour permettre de pondérer les épaisseurs optiques des molécules et des aérosols afin de compenser la non prise en compte des termes d'interaction diffuse entre l'atmosphère et la surface, volontairement négligés ici (termes entre crochets, c.f. eq. 15). Ces termes d'interactions dépendent du type d'aérosol. Le coefficient  $\beta$  diminue avec la taille de l'aérosol, les plus gros aérosols diffusant la lumière incidente préférentiellement vers la surface.

Dans le cas de canaux spectraux faiblement affecté par la diffusion moléculaire ( $\lambda > 670$  nm), l'expression 17 peut encore se simplifier en calculant la luminance polarisée atmosphérique à l'aide de la diffusion simple. J'ai utilisé cette dernière approche pour modéliser les signaux de l'instrument MICROPOL acquis au-dessus des surfaces continentales à 670 et 865 nm, avec la réflectance polarisée de la surface ( $L_p^{surf}$ ) estimée à l'aide de la mesure effectuée à 2200 nm, où l'effet de l'atmosphère est minimisé (Waquet et al., 2007). J'ai utilisé la même approche pour fournir une première modélisation du signal pour des scènes présentant des aérosols au-dessus des nuages. Pour cela, j'ai substitué le terme  $\mu_s R_p^{surf}$  dans l'équation 17 par la luminance polarisée réfléchie par le nuage. Cette approximation revient à assimiler le nuage à une surface et m'a permis d'estimer l'épaisseur optique des aérosols au-dessus des nuages (Waquet et al., 2009c).

Les termes d'interactions diffuses entre surface et atmosphère augmentent avec la longueur d'onde diminuant (la diffusion moléculaire augmentant). L'équation précédente (eq. 17) n'est donc plus suffisamment précise pour la modélisation de la luminance polarisée aux plus courtes longueurs d'ondes du visible. Durant mon post-doctorat à GISS, j'ai contribué à développer un modèle permettant de prendre en compte les interactions diffuses entre l'atmosphère et la surface en polarisation sur une gamme spectrale étendue (Waquet et al., 2009a). La contribution polarisée des surfaces est principalement générée par la réflexion spéculaire de la lumière sur les facettes des éléments constituant une surface (cuticules pour des feuilles, grains de sables). La lumière se polarise par réflexion sur une surface en suivant les lois de Fresnel. Différents modèles théorique et semi-empirique de BPDF<sup>17</sup> ont été développés et utilisés pour des applications en télédétection (c.f. section 2.5.4). Un modèle simplifié de la réflectance polarisée de la surface peut s'écrire :

$$R_p^{Surf}(\mu_s, \mu_v, \varphi_s - \varphi_v) = \xi R_p^{Fresnel}(\gamma) \quad (18)$$

avec  $R_p^{Fresnel}$  le coefficient polarisé de Fresnel,  $\gamma$  l'angle de réflexion et  $\xi$  un coefficient empirique.

Si ce modèle ne permet pas de modéliser finement la contribution directe de la surface polarisée (c.f. figure 17), il permet toutefois de modéliser de façon robuste l'interaction du rayonnement diffus atmosphérique avec la surface pour la composante polarisée du rayonnement.

---

<sup>17</sup> BPDF Bidirectionnal Polarized Distribution Function

En exploitant cette simplification, la luminance polarisée réfléchie par le système surface-atmosphère peut alors s'écrire,

$$L_{p,\lambda}^{Calc} = L_{p,\lambda}^{Atm} + [L_{p,\lambda,Fresnel\_surface}^{Atm+Surf} - L_{p,\lambda}^{Atm}] \xi \quad (19)$$

où la dépendance à la géométrie d'observation a été omise par soucis de simplification. Le terme  $L_{p,\lambda,Fresnel\_surface}^{Atm+Surf}$  correspond à la luminance polarisée calculée de façon exacte en utilisant les lois de Fresnel pour modéliser la matrice de réflexion. Le terme entre crochets dans l'équation 19 correspond aux contributions de la surface (c.f. eq. 15), corrigé par le coefficient  $\xi$  permettant d'ajuster l'amplitude des interactions diffuses entre surface et atmosphère. En supposant que la réflectance polarisée de surface soit connue (via une mesure ou une connaissance a priori), le coefficient  $\xi$  peut être estimé pour chaque géométrie d'observation, comme suit,

$$\xi(\mu_s, \mu_v, \varphi_s - \varphi_v) = R_p^{Surf}(\mu_s, \mu_v, \varphi_s - \varphi_v) / R_p^{Fresnel} \quad (20)$$

J'ai utilisé les équations 19 et 20 pour modéliser les mesures aéroportées de l'instrument RSP acquises au-dessus des surfaces terrestres (Waquet et al., 2009a, Cairns et al., 2009). Cette approximation a permis de modéliser avec succès les observations de RSP même lorsque différentes surfaces étaient observées dans le champ de vue l'instrument. A l'aide de calculs exacts, j'ai montré que les biais introduits sur la luminance polarisée par cette approximation restent inférieurs à  $2.10^{-4}$  de 410 à 1620 nm pour des conditions standards d'observation (Waquet et al., 2009a).

## 2.5. Méthodes inverses.

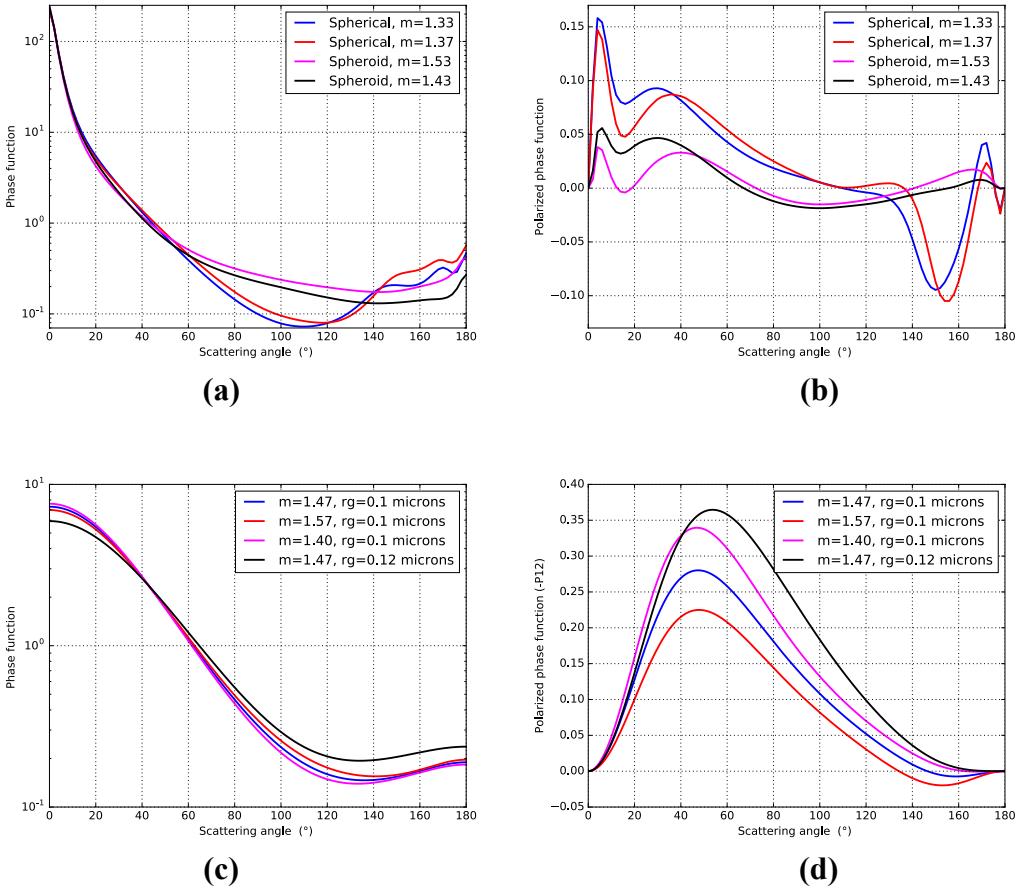
Les propriétés microphysiques des aérosols varient fortement spatialement et temporellement (c.f. chapitre 1). La première étape pour construire un algorithme, utilisant des mesures passives, consiste à définir les paramètres physiques et microphysiques des aérosols (charge, taille et composition chimique) permettant de reproduire les effets de ces particules sur la diffusion et d'absorption du rayonnement atmosphérique. La deuxième étape consiste à relier ces paramètres aux paramètres optiques qui contrôlent les grandeurs radiatives utilisées en télédétection passive (luminances ou réflectances totale et polarisée). Un code permet ensuite de résoudre l'équation du transfert radiatif et permet de simuler les observations. Le code doit prendre en compte les interactions entre l'atmosphère et la surface. On « ajuste » ensuite les grandeurs radiatives dans le code pour faire correspondre les observations aux mesures. La stratégie envisagée pour ajuster ces grandeurs et l'ensemble des codes permettant de réaliser les calculs intermédiaires constituent ce que l'on appelle un algorithme d'inversion. Je vais commencer par illustrer la sensibilité de la mesure polarisée aux propriétés des aérosols. Je décrirai ensuite les méthodes inverses de type « LUT » (Look Up Table) qui utilisent les résultats de calculs tabulés. Dans ce cas, on parle de « pseudo-inversion ». Cette approche est très utilisée pour le traitement des mesures satellites. Je présenterai ensuite les méthodes dites variationnelles, basées sur des concepts statistiques (théorème de Bayes). Je présente brièvement l'algorithme GRASP (Dubovik et al., 2011), développé au LOA, qui appartient à la même famille de méthode. J'illustre chaque méthode principalement par des résultats issus de mes travaux pour l'étude des

aérosols au-dessus des océans et des terres en ciel clair. Mes travaux m'ont également conduit à m'intéresser à l'étude des contributions radiatives des surfaces en polarisation. Je résumerai également les principaux résultats obtenus sur ce thème. La dernière partie de chapitre porte sur la détection des aérosols dans les scènes nuageuses, une thématique sur laquelle j'ai également pu tester différentes méthodes d'inversion.

### 2.5.1. Sensibilité de la mesure passive polarisée aux propriétés des aérosols.

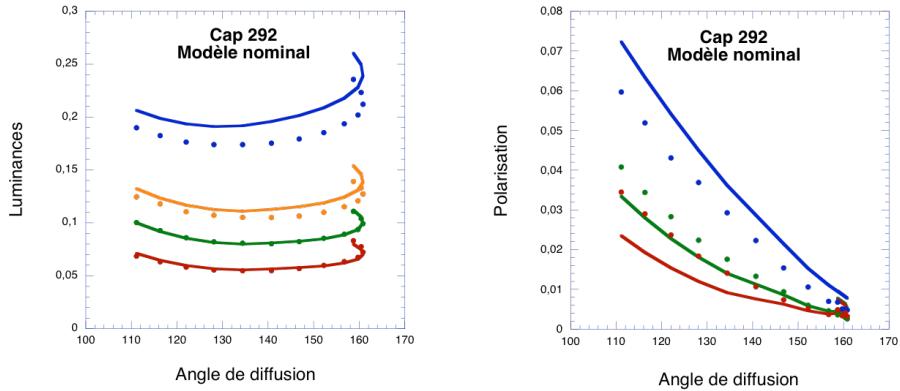
La surface océanique peut être considérée comme sombre dans certains canaux spectraux ( $\lambda > 600$  nm) dans des conditions d'océan ouvert (à distance des côtes). Les observations acquises en dehors du glitter, pour des canaux centrés sur 670 et 865 nm ont été historiquement utilisées pour observer les aérosols au-dessus de l'océan. Pour ces longueurs d'ondes et ces géométries d'observation, les codes de transfert radiatif permettent de modéliser précisément les mesures des radiomètres avec un minimum d'hypothèses sur l'état de la surface (i.e. la vitesse du vent en surface doit être connue). Les calculs de Mie montrent que le coefficient d'extinction des aérosols varie avec leur taille. Pour les particules du mode fin, le coefficient d'extinction décroît rapidement avec la longueur d'onde et celle-ci devient faible dans le moyen-infrarouge (à 2200 nm). L'effet d'extinction du rayonnement par les particules du mode grossier est, par contre, faiblement dépendant de la longueur d'onde et ces particules affectent l'ensemble du spectre solaire. En faisant des hypothèses sur l'ensemble des paramètres des aérosols, on peut exploiter ces effets pour estimer les épaisseurs optiques associées aux modes fin et grossier des aérosols à l'aide de mesures de luminances totales multi-spectrales (670 à 2200 nm). C'est la base de la méthode développée pour analyser les mesures de l'instrument MODIS (Tanré et al., 1997). J'ai adapté cette méthode pour l'analyse des données acquises par l'instrument MICROPOL (Waquet et al., 2005)

L'analyse des données fournies par POLDER a montré l'importance de prendre en compte la forme des particules dans l'analyse des données de luminance directionnelle acquises aux dessus de l'océan (Herman et al., 2005). Cette étude a montré qu'il est nécessaire de prendre en compte 3 composantes pour les aérosols au-dessus de l'océan : un mode fin, un mode un mode grossier sphérique et un mode grossier non-sphérique. Un modèle de particules non-sphériques empirique avait été introduit dans l'algorithme pour améliorer la modélisation de la diffusion par les poussières minérales (Volten et al., 2001). Au-dessus des surfaces océaniques, il existe toujours une couche marine associée à des particules grossières diffusantes. La polarisation étant sensible à l'indice de réfraction de ces particules (i.e. présence d'arcs comme pour les gouttelettes nuageuses), la méthode prenait en compte plusieurs valeurs d'indice de réfraction (1.33, 1.35 et 1.37), en fonction du degré d'hydratation de ces particules (c.f. figure 10-b). L'information contenue dans les mesures polarisées provient essentiellement du processus de la diffusion simple. La dépendance angulaire de la diffusion simple dépend de la fonction de phase polarisée (i.e. P12 élément de la matrice de phase). La dépendance de la fonction de la phase polarisée avec l'angle de diffusion et la longueur d'onde dépend fortement des propriétés microphysiques des aérosols, en particulier la taille et la partie réelle de l'indice de réfraction pour le mode fin (c.f. figures 10-c et 10-d).



**Figure 10.** (a) et (b) Fonctions de phase totale et polarisée pour des particules sphérique et non-sphérique (sphéroïdes) en fonction de l'angle de diffusion. Différentes valeurs sont considérées pour la partie réelle de l'indice de réfraction des aérosols (1.33, 1.37, 1.53 et 1.43). Le rayon effectif de la distribution en taille vaut 2.38 microns pour les 4 modèles de particules. (c) et (d) Fonctions de phase totale et polarisée pour des particules du mode fin sphérique pour différentes valeurs d'indice de réfraction (partie réelle) et de tailles.

Malgré les améliorations apportées sur la modélisation du mode grossier, il restait des biais sur la modélisation des mesures de POLDER en particulier dans le cas de particules du mode fin absorbantes. Les travaux de Chowdhary et al. (2005) ont montré qu'il était possible de restituer l'absorption des aérosols au-dessus de l'océan à partir de la combinaison des mesures en luminance totale et polarisée de l'instrument RSP. Je me suis donc intéressé au problème de l'inversion des propriétés d'absorption des aérosols avec POLDER. Avec l'algorithme précédent (Herman et al., 2005), les propriétés des aérosols étaient inversées à l'aide de canaux spectraux centrés sur 670 et 865 nm et en supposant les aérosols non-absorbants. De plus, la polarisation n'était pas utilisée de façon quantitative. En effet, la luminance polarisée était uniquement utilisée, en deuxième approche pour sélectionner parmi les modèles respectant les luminances totales celui qui restituait au mieux la polarisation. La figure 11 montre un exemple des biais obtenus entre mesures et simulations pour un cas de particules de feux de biomasse.



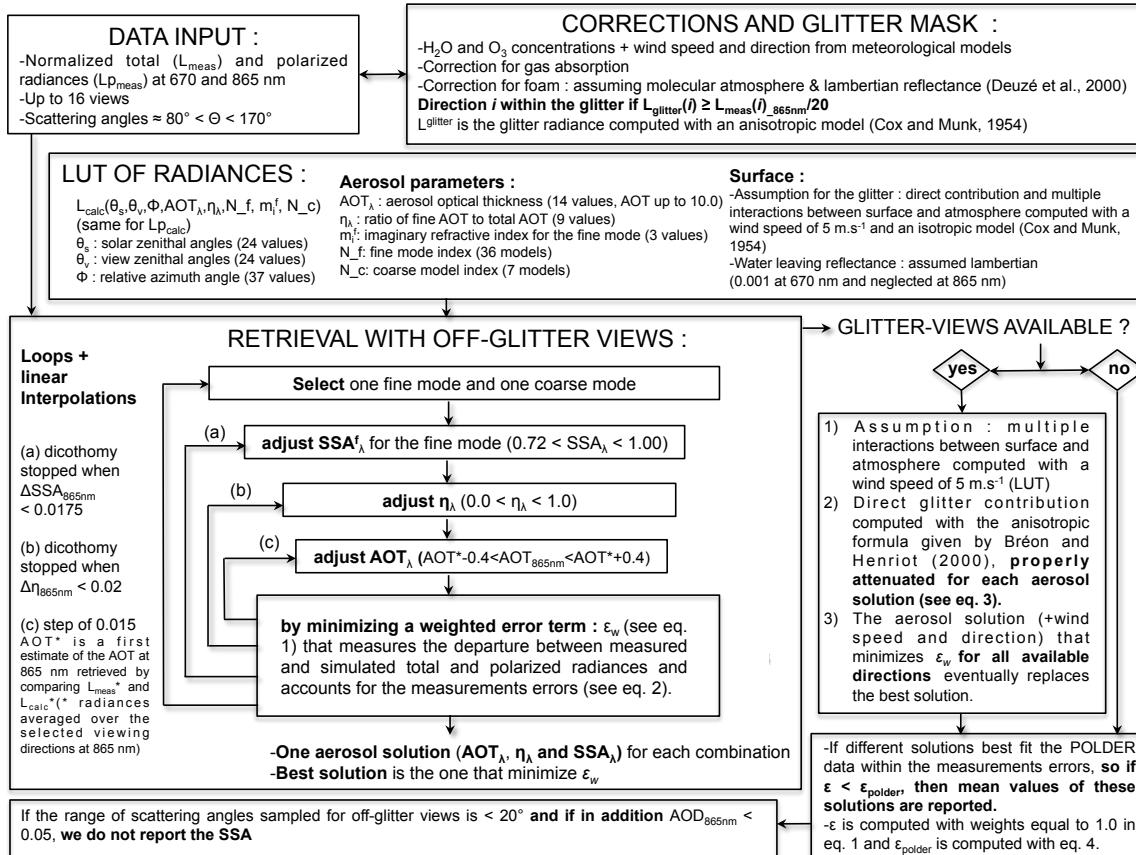
**Figure 11.** Mesures de l'instrument POLDER 2 (points) pour un pixel et modélisation du signal à l'aide des résultats de l'algorithme opérationnel développé pour POLDER (Herman et al., 2005) (les modèles d'aérosols sont non absorbants = hypothèse conservative). Longueur d'onde par ordre de luminances décroissantes : 440, 550, 670 et 865 nm. (source : M. Herman, LOA)

On peut remarquer que les mesures associées aux canaux utilisés dans l'inversion sont modélisées avec précision (luminances à 670 et 865 nm). Les biais observés sur les autres canaux s'expliquent en grande partie par le fait que l'algorithme utilise des modèles d'aérosols non-absorbants et aussi, dans une moindre mesure, par l'utilisation d'un modèle empirique pour les particules non-sphériques. La luminance polarisée à 670 et 865 nm est sous-estimée dans la modélisation. La non prise en compte de l'absorption, conduisait l'algorithme à surestimer la mode grossier non-sphérique des aérosols et à sous-estimer le mode fin des aérosols. À 440 nm, on observe également des biais entre mesures et simulation en polarisation. Ce canal polarisé présente une sensibilité marquée à l'altitude de la couche d'aérosol. Cet effet est lié à un effet de « masque » ou d'atténuation de la contribution polarisée de molécules par les aérosols. En détachant la couche d'aérosol de la surface dans les calculs, on réduit ces biais et on peut fournir une estimation qualitative sur l'altitude de la couche (Tanré et al., 2011).

#### 2.5.2. Méthode « LUT » pour l'inversion des propriétés des aérosols au-dessus de l'océan.

Mon travail a principalement consisté à améliorer la description du mode fin des aérosols dans la méthode POLDER (taille, partie réelle de l'indice de réfraction et absorption). J'ai inclus les mesures polarisées fournies par POLDER à 670 et 865 nm et j'ai utilisé des modèles de particules non-sphériques théoriques. Ces calculs sont issus de la méthode T-matrix permettant le calcul des propriétés optiques pour des particules de type sphéroïde (prolate et oblate). Une base de propriétés optique pour ces particules non-sphériques a été développée pour des applications en télédétection par Dubovik et al., (2006). La figure 12 montre un schéma de principe de l'algorithme que j'ai proposé pour le retraitement des données fournies par POLDER-3 au-dessus de l'océan. De façon simplifiée, la méthode reprend les bases des algorithmes MODIS et POLDER. Un paramètre  $\eta$  correspondant à la contribution relative du mode fin à l'épaisseur optique totale est inversé à l'aide de l'information spectrale. Le mode grossier est défini comme la combinaison d'un modèle de particules non-sphérique mélangé avec un modèle de particules sphériques dans différentes proportions (0, 25, 50, 75 et 100%). Des valeurs d'indice de réfraction différentes sont également considérées pour la composante sphérique. Le mode fin est décrit par différentes combinaisons de tailles et d'indice de réfraction (37 modèles), couvrant la

gamme de variabilité typiquement observée pour les particules associées à ce mode. Pour les scènes océaniques sombres, la sensibilité de la mesure passive à l'absorption provient essentiellement de l'effet d'atténuation de la diffusion multiple par l'absorption des aérosols. La luminance totale est sensible à la diffusion multiple et c'est donc l'information fournie par la luminance totale qui permet principalement de contraindre le niveau d'absorption des aérosols. La polarisation étant sensible à la diffusion par les aérosols du mode fin, la combinaison des luminances totale et polarisée permet de lever l'ambiguïté entre processus de diffusion et d'absorption pour ces particules. Si la quantité d'information directionnelle est suffisante, cela permet d'estimer l'albédo de simple diffusion des aérosols.

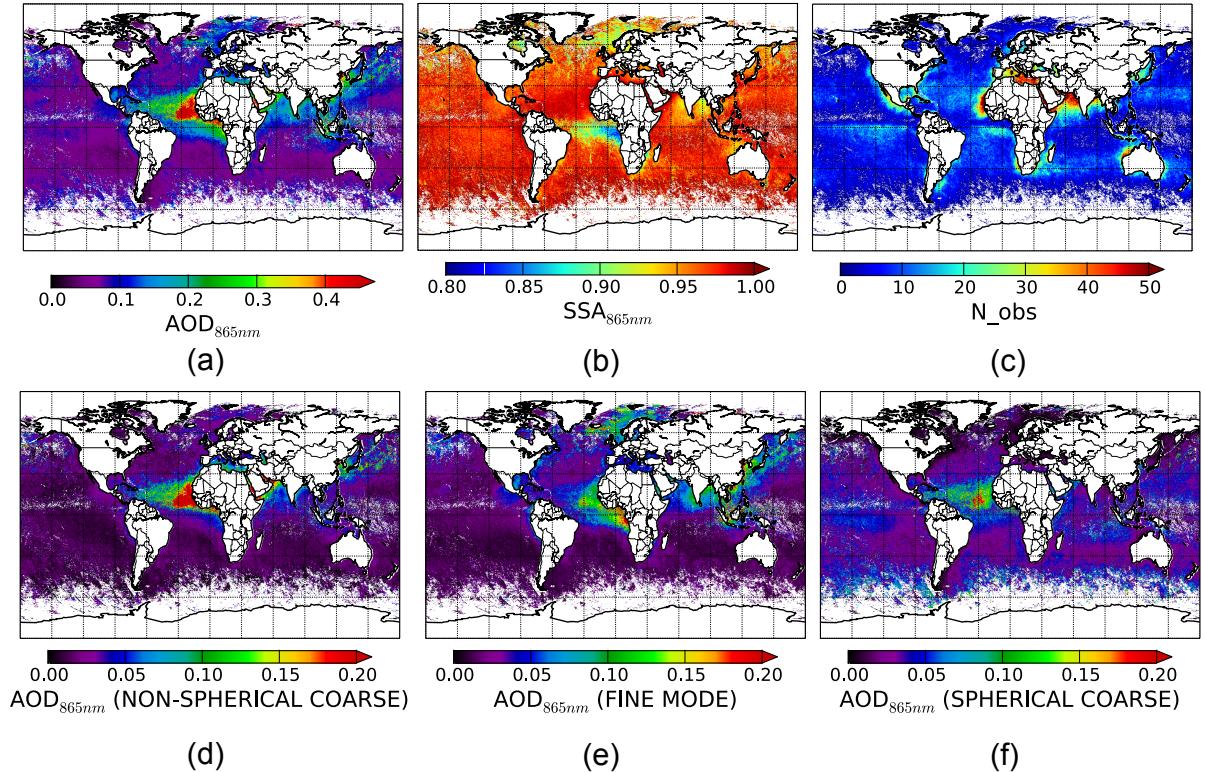


**Figure 12.** Vue schématique de l'algorithme utilisé pour inverser l'albédo de simple diffusion des aérosols (Single Scattering Albedo, SSA) et d'autres propriétés des aérosols en ciel clair au dessus de l'océan à partir des mesures de POLDER acquises à 670 et 865 nm (Waquet et al., 2015).

Des corrections sont tout d'abord effectuées sur les mesures (absorption gazeuse, correction approchée pour l'écume). Des calculs de transfert radiatif sont réalisés pour différents modèles d'aérosol, différentes charges en aérosol et des géométries d'observation variées. Des processus d'interpolation sont ensuite utilisés et une stratégie d'inversion est mise en place pour l'exploitation de ces LUTs (c. f. schéma). L'algorithme détermine la meilleure solution (combinaison de modèles et épaisseur optique) qui minimise un terme d'erreur calculé entre mesures et simulations. La vitesse de vent, qui contrôle l'amplitude du glitter, n'est pas inversée par la méthode et une hypothèse est faite sur la valeur de la vitesse du vent ( $5 \text{ m.s}^{-1}$ ). Cela impacte le calcul des interactions diffuses entre atmosphère et surface et peut faiblement impacter la simulation des mesures réalisée en dehors du glitter. La glitter est toutefois utilisé dans l'inversion de façon originale. Lorsque le glitter est observé par

l'instrument, la gamme d'angle de diffusion échantillonnée par l'instrument est nécessairement réduite. Cela diminue la sensibilité de la méthode à l'absorption des aérosols et des solutions multiple apparaissent (i.e. différents combinaisons de particules modélisant les mesures avec une précision équivalente). La méthode teste chaque solution dans le glitter en inversant les propriétés de ce dernier (vitesse et direction du vent). Les solutions (modèle et épaisseur optique) ne permettant pas de modéliser les mesures acquises dans le glitter sont exclues. Le glitter et les propriétés des aérosols ne sont donc pas inversés simultanément ce qui permet de réduire les temps de calcul. Une autre hypothèse importante de la méthode est de considérer les aérosols du mode grossier comme étant purement diffusants. Cette hypothèse est justifiée par le fait que les principaux aérosols du mode grossier (poussières minérales et aérosols marins) absorbent peu aux longueurs d'onde considérées (670 et 865 nm). A ces longueurs d'ondes, la principale substance absorbante est la suie. Des études récentes ont également montré que le carbone brun, qui correspond à la composante absorbante des aérosols organiques, peut également absorber la lumière à ces longueurs d'ondes (Pokhrel et al. 2017).

La figure 13 montre un exemple les résultats obtenus avec cet algorithme appliqué aux données POLDER-3 acquises en ciel clair au-dessus de l'océan pour l'année 2006. Les données sont filtrées avec un critère de qualité sur la modélisation du signal (terme d'erreur  $< 2.5\%$ ). On peut observer les principales structures des aérosols à l'échelle globale : les poussières minérales contribuent essentiellement au mode grossier non-sphérique et se situent à proximité des déserts. Le mode grossier sphérique est réparti sur l'ensemble des océans et augmente pour les zones associées à des vents forts en surface. On peut noter que le panache de poussières d'origine saharienne est associé à une composante grossière sphérique non-négligeable, les propriétés de forme des aérosols pouvant évoluer durant le transport. L'albédo de simple diffusion (figure 13-b) permet de caractériser le type de particules en fonction de son absorption. Les aérosols de feux de biomasse anthropiques transportés au-dessus de l'Atlantique sud-est sont particulièrement absorbants (faibles valeurs de SSA). A l'inverse, les aérosols du mode fin observé au large du Sahara et les aérosols observés au large de la Chine sont, en moyenne, faiblement absorbants. Plus surprenant, la mise en évidence de panaches absorbants aux hautes latitudes (Scandinavie et baie d'Hudson), probablement associés à des feux naturels se produisant dans les forêts boréales. Au nord de l'Australie, des particules liées à des feux de végétation sont également détectées de façon récurrente sur la partie nord-ouest du continent. Des aérosols du mode fin et absorbants sont détectés autour de l'Inde, avec des charges maximales observées en hiver, suggérant une origine anthropique. Il y a une variabilité saisonnière très marquée de ces particules absorbantes décrite dans Waquet et al., (2015).



**Figure 13.** (a) Epaisseur optique totale (AOD), (b) albédo de diffusion simple (SSA), (c) nombre d'observation, (d) épaisseur optique du mode grossier non-sphérique, (e) épaisseur optique du mode fin et (f) épaisseur optique du mode grossier sphérique. Valeurs moyennes pour l'année 2006. Source : Waquet et al., (2015)

L'épaisseur optique inversée a été validée à l'aide des mesures du réseau AERONET. Cette méthode donne des résultats assez équivalents à ceux obtenus avec l'algorithme opérationnel. Les comparaisons effectuées sur albédo de simple diffusion des aérosols montrent une plus grande dispersion et les données concomitantes sont peu nombreuses (c.f. figure 5 dans Waquet et al., 2015). Différentes raisons peuvent expliquer ces difficultés. Ce paramètre n'est pas fourni systématiquement par AERONET, car des conditions d'observation particulières sont nécessaires à son inversion (exemple : charge en aérosol suffisante). De plus, les principales zones océaniques associées à des panaches d'aérosols absorbants sont situées dans des régions peu couvertes par les mesures du réseau AERONET (Atlantique sud est, nord de la Scandinavie). Enfin, les hypothèses sur l'absorption utilisées dans mon algorithme et dans AERONET sont différentes. En effet, pour AERONET, l'absorption des aérosols est la même pour les modes fin et grossier des aérosols. Mon hypothèse consiste à ne répartir l'absorption que sur le mode fin des aérosols, en limitant l'inversion aux canaux 670 et 865 nm. Dans l'analyse des données spatiales, le choix des hypothèses peut conduire, dans bien des cas, à des résultats différents concernant l'albédo de simple diffusion des aérosols. Si l'information spectrale ou directionnelle n'est pas suffisante, ces deux hypothèses peuvent même conduire à des résultats équivalents en terme de modélisation du signal (i.e. existence de solutions multiples). Je reviendrai dans la partie projet de recherche sur la nécessité de développer de méthodes alternatives pour caractériser l'albédo de simple diffusion des aérosols.

### 2.5.3. Méthodes variationnelles.

L'augmentation croissante de la quantité d'information à prendre en compte (directionnelle, spectrale, polarisée) et du nombre de paramètres à inverser, à nécessiter le développement d'approches alternatives aux LUTs. Les méthodes variationnelles remplacent progressivement les LUTs pour l'analyse de mesures des capteurs satellites. Ces méthodes permettent de retrouver la meilleure représentation d'un ensemble de paramètres à partir d'une mesure donnée, en prenant en compte toute l'information a priori disponible, ainsi que celle sur la mesure. Elle permet aussi une description du contenu en information de la mesure et de l'erreur associée aux paramètres inversés. Pour ce type de méthode, on réalise généralement des calculs de transfert radiatif et des calculs de Mie en temps réel. La principale limitation est donc le temps de calcul. Pendant mon post-doc à GISS, j'ai implémenté une méthode d'estimation optimale pour l'analyse des données fournies par l'instrument RSP (Waquet et al., 2009a). J'ai également utilisé cette méthode pour l'analyse des données POLDER acquises lors de l'éruption du volcan Eyjafjallajökull (Waquet et al., 2014) et pour l'étude des aérosols au-dessus des nuages (Waquet et al., 2013a). Je présente ci-dessous les bases théoriques de cette méthode.

De façon générale, une mesure y peut être modélisée de la façon suivante :

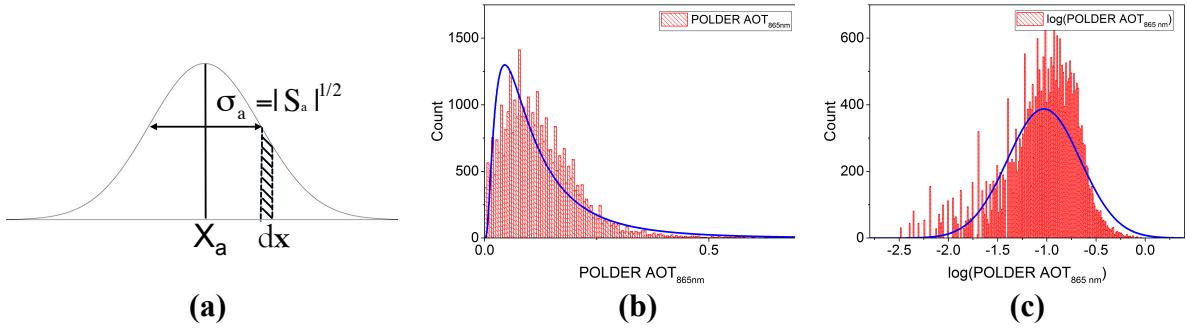
$$\mathbf{y} = F(\mathbf{x}) + \varepsilon \quad (21)$$

avec  $\varepsilon$  l'erreur sur la mesure et  $F(\mathbf{x})$  la simulation réalisée avec le modèle direct,  $\mathbf{x}$  est le vecteur contenant les paramètres des aérosols à inverser (épaisseur optique, indice de réfraction ...).

On décrit l'erreur associée aux mesures et à l'information a-priori sur les aérosols à l'aide de fonctions de densité de probabilité (PDFs) gaussiennes. Par exemple, pour l'a-priori

$$P(\mathbf{x}) = \frac{1}{(2\pi)^{1/2} |\mathbf{S}_a|^{1/2}} e^{\left(-\frac{1}{2}(\mathbf{x}-\mathbf{x}_a)^T \mathbf{S}_a^{-1} (\mathbf{x}-\mathbf{x}_a)\right)} \quad (22)$$

avec  $\mathbf{x}_a$  le vecteur d'état a-priori,  $\mathbf{S}_a$  la matrice de variance-covariance d'erreur de l'a-priori et  $P(\mathbf{x})$  une probabilité exprimant la connaissance de  $\mathbf{x}$  avant la mesure. Par exemple, la partie réelle de l'indice de réfraction ( $m_r$ ) des aérosols du mode fin est, en moyenne, de 1.47 et peut varier typiquement entre 1.4 (aérosols sulfatés) et 1.54 (particules de brûlis) ce qui conduit à  $\mathbf{x}_a(m_r)=1.47$  et  $\mathbf{S}_a(m_r)=0.07^2$ . En pratique, on inverse le logarithme des paramètres des aérosols, car la distribution du logarithme des paramètres des aérosols suit une loi gaussienne alors que la distribution des paramètres des aérosols suit plutôt une loi log-normale comme le montre la figure 14-b.



**Figure 14.** (a) Fonction de densité de probabilité  $P(x)$ ,  $P(x)dx$  est la probabilité que  $x$  appartienne à l'intervalle  $[x, x+dx]$ . (b) histogramme des épaisseurs optiques des aérosols inversées au-dessus des nuages par POLDER. (c) Histogramme du logarithme de cette quantité.

L'approche est statistique, on cherche le vecteur d'état  $\mathbf{x}$  le plus probable par rapport à notre vecteur mesure  $\mathbf{y}$ . Le théorème de Bayes en statistique permet d'exprimer cette probabilité comme,

$$P(\mathbf{x} \mid \mathbf{y}) = \frac{P(\mathbf{y} \mid \mathbf{x}).P(\mathbf{x})}{P(\mathbf{y})} \quad (23)$$

avec  $P(\mathbf{y} \mid \mathbf{x})$ , une probabilité exprimant la connaissance que l'on aurait de  $\mathbf{y}$  si l'état était donné par  $\mathbf{x}$ ,  $P(\mathbf{x})$ , une probabilité exprimant notre connaissance de  $\mathbf{x}$  avant la mesure. La probabilité  $P(\mathbf{y})$  exprime la PDF du vecteur mesure  $\mathbf{y}$  et n'a pas besoin d'être connue en pratique. En représentant chaque probabilité par une PDF et en prenant le logarithme de l'équation 23, il vient :

$$-2 \ln P(\mathbf{x} \mid \mathbf{y}) = [\mathbf{y} - \mathbf{F}(\mathbf{x})]^T \mathbf{S}_\epsilon^{-1} [\mathbf{y} - \mathbf{F}(\mathbf{x})] + [\mathbf{x} - \mathbf{x}_a]^T \mathbf{S}_a^{-1} [\mathbf{x} - \mathbf{x}_a] + c \quad (24)$$

Le terme de droite correspond à la fonction coût : on retrouve un terme d'erreur (premier terme du membre de droite) estimant les différences entre mesure et simulation, pondéré par la matrice de variance-covariance d'erreur pour les mesures  $\mathbf{S}_\epsilon$ . Le second terme de droite dépend de l'information a-priori. Afin de trouver le meilleur estimateur du vecteur d'état  $\mathbf{x}$ , il suffit de trouver l'état pour lequel la dérivée de la probabilité  $P(\mathbf{x} \mid \mathbf{y})$  par rapport à  $\mathbf{x}$  est nulle, ce qui revient à trouver le vecteur  $\mathbf{x}$  permettant de minimiser la fonction coût. On utilise une méthode de Newton pour déterminer le zéro de la dérivée de la fonction coût. Cette méthode fonctionne lorsque le problème est modérément non linéaire. La méthode de Newton appliquée à ce problème conduit à un processus itératif de recherche du vecteur  $\mathbf{x}$ , tel que :

$$\mathbf{x}_{i+1} = \mathbf{x}_i - [\nabla_x g(\mathbf{x}_i)]^{-1} g(\mathbf{x}_i) \quad (25)$$

avec  $i$  l'ordre de l'itération,  $g(\mathbf{x})$  la dérivée première de la fonction cout (Eq. 24) et  $\nabla_x g$  la dérivée seconde de la fonction cout.

Des modifications de l'équation (25) ont été proposées pour aider à la convergence, comme celle proposée par Levenberg et Marquadt :

$$\mathbf{x}_{i+1} = \mathbf{x}_i - [\nabla_x g(\mathbf{x}_i) + \gamma \cdot \mathbf{I}]^{-1} \cdot g(\mathbf{x}_i) \quad (26)$$

avec  $\mathbf{I}$  la matrice identité. Dans cette formulation, on va diminuer le terme de correction apporté au vecteur  $\mathbf{x}_i$ , en augmentant un coefficient empirique  $\gamma$  afin de minimiser la fonction coût après chaque itération. La convergence est plus fiable mais également plus lente. D'autres modifications empiriques ont été proposées (exemple : régularisation de Tikhonov). Le test statistique du  $\chi^2$  peut-être utilisé pour s'assurer de la bonne convergence :

$$\chi^2 = [\mathbf{y} - \mathbf{F}(\mathbf{x})]^T \mathbf{S}_\epsilon^{-1} [\mathbf{y} - \mathbf{F}(\mathbf{x})] + [\mathbf{x} - \mathbf{x}_a]^T \mathbf{S}_a^{-1} [\mathbf{x} - \mathbf{x}_a] \quad (27)$$

Une bonne convergence est typiquement obtenue lorsque  $\chi^2 \approx n_y$ , avec  $n_y$  le nombre de mesures.

Le formalisme de la MEO permet également d'obtenir l'erreur sur les paramètres inversés. La matrice de variance-covariance d'erreur, du vecteur d'état,  $\mathbf{S}_x$ , s'écrit,

$$\mathbf{S}_x = (\mathbf{S}_a^{-1} + \mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_\epsilon^{-1} \mathbf{K}_i)^{-1} \quad (28)$$

On obtient l'erreur sur les paramètres inversés en prenant les éléments diagonaux de  $\sqrt{\mathbf{S}_x^{ii}}$ . Ces erreurs dépendent de l'a-priori, des erreurs associées aux mesures. Ces erreurs dépendent aussi de la sensibilité de la mesure aux paramètres recherchés, au travers de la matrice jacobienne  $\mathbf{K}$ . Celle-ci correspond à la dérivée des luminances totale et polarisée par rapport aux paramètres recherchés :

$$\mathbf{K}(\mathbf{x}) = \nabla_x \mathbf{F}(\mathbf{x}) \quad (29)$$

On suppose généralement que les différentes sources d'erreurs sont indépendantes, dans ce cas, la matrice  $\mathbf{S}_\epsilon$  peut s'écrire comme la somme des matrices de variance-covariance associées à chaque type d'erreur

$$\mathbf{S}_\epsilon = \mathbf{S}_{noise} + \mathbf{S}_{cal} + \mathbf{S}_{pol} \quad (30)$$

La matrice  $\mathbf{S}_{noise}$  prend en compte le bruit instrumental,  $\mathbf{S}_{cal}$  les incertitudes associées à l'étalonnage absolu de l'instrument et  $\mathbf{S}_{pol}$  les erreurs associées à la mesure de la polarisation. On considère, en générale, que les erreurs sont non corrélées et que les matrices de variance-covariance peuvent être considérées comme diagonales ( $S_{ij} = 0$  for  $i \neq j$ ). Cette hypothèse est typiquement considérée dans les études de sensibilité (Lebsock et al. 2007, Hasekamp and Landgraf 2007).

Ces matrices s'écrivent pour la luminance polarisée :

$$\begin{aligned} S_{\epsilon,i,i} &= (\sigma_{p,i})^2 \\ S_{cal,i,i} &= \left( \frac{\Delta R_i}{R_i} \cdot R_{p,i} \right)^2 \\ S_{pol,i,i} &= (\Delta P_i R_i)^2 \end{aligned} \quad (31)$$

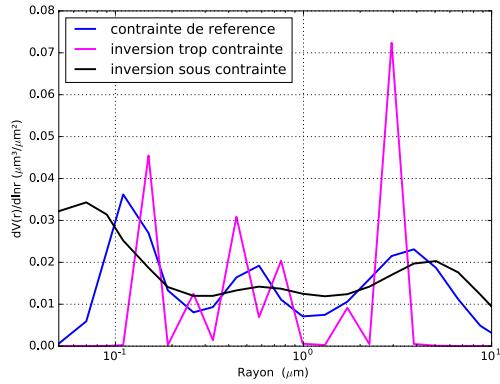
avec  $i$  un indice repérant la mesure,  $\sigma_p$  le bruit radiométrique sur la luminance polarisée,  $\frac{\Delta R_i}{R_i}$  la précision sur l'étalonnage absolu en relatif (exemple : 3% pour POLDER) et  $\Delta P$  la précision associée à la mesure du taux de polarisation, avec  $R$  la réflectance mesurée. Ces matrices sont ensuite remplies en fonction des caractéristiques instrumentales de chaque instrument (Fougnie et al., 2007, Waquet et al., 2009a).

La méthode GRASP, développée au LOA (Dubovik et al., 2011), utilise un formalisme très proche. Au niveau théorique, la principale différence consiste à ajouter un terme supplémentaire dans la fonction coût permettant de « lisser » l'inversion de certains paramètres :

$$\gamma \cdot \mathbf{S}(\mathbf{x}) = \gamma \cdot \mathbf{x}^T \boldsymbol{\Omega} \mathbf{x} \quad (32)$$

avec  $\boldsymbol{\Omega}$  une matrice de « lissage » et  $\gamma$  un paramètre d'ajustement.

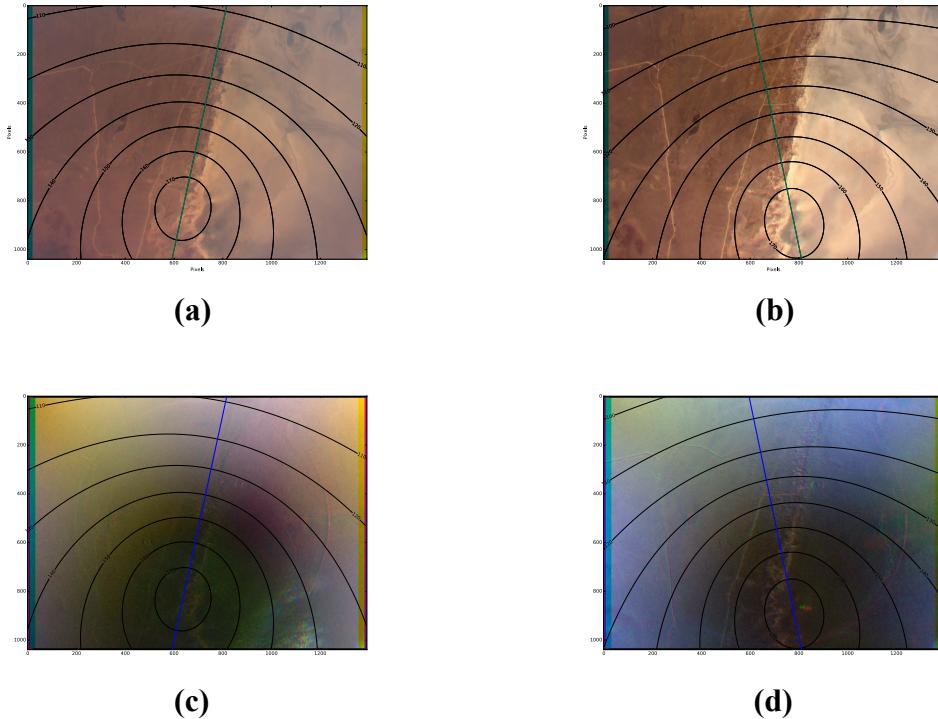
La matrice de « lissage » peut prendre différente forme en fonction du problème. Une façon simple d'apprécier si une fonction ne présente pas trop de non linéarité est de calculer ces dérivées. Dans GRASP, la solution  $\mathbf{x}$  est contrainte en minimisant la dérivée seconde des composants du vecteur  $\mathbf{x}$ . Par exemple, l'indice de réfraction complexe des aérosols évolue lentement avec la longueur d'onde (sur le spectre solaire). Si la polarisation permet une sensibilité à ce paramètre, celle-ci n'est pas nécessairement distribuée de façon égale sur l'ensemble du spectre. Pour les aérosols du mode fin, la sensibilité à la partie réelle de l'indice de réfraction est maximale pour les petites longueurs d'onde du visible et décroît avec la longueur d'onde augmentant. L'utilisation de cette contrainte permet de restituer un indice de réfraction présentant moins d'oscillations sur le spectre solaire. Cette contrainte est également utilisée dans GRASP pour inverser la distribution en taille des aérosols. L'espace continu des rayons de particules est discréteisé en un certain nombre de classes de rayon et la quantité de particules associée à chaque classe est inversée. Le terme de l'équation 32 permet d'éviter des fluctuations (non-physiques) sur la concentration en aérosol d'une classe de rayon à une autre. Enfin, le paramètre  $\gamma$  permet d'ajuster empiriquement le poids de ce terme dans la fonction coût, de façon, par exemple, à ne pas trop contraindre l'inversion. C'est un héritage de l'algorithme développé pour inverser les mesures des photomètres du réseau AERONET. Un exemple des effets de ce terme de lissage sur les résultats est illustré sur la figure 15.



**Figure 15.** Exemple d'une inversion de la distribution en taille des aérosols, réalisée à partir de données photométriques du réseau AERONET. Les inversions sont effectuées sans contraintes ( $\gamma=0$  dans l'équation 32), avec la contrainte de référence, et avec une contrainte trop forte. On peut noter la présence d'un troisième mode (centré sur 0.5 microns), capturé par la méthode, lié à la présence d'aérosols d'origine volcanique. Source : Benjamin Torres, LOA.

#### 2.5.4. Polarisation de la surface.

La figure 16 montre les compositions colorées réalisées à partir des images d'OSIRIS acquises à la frontière du désert de l'Etosha Pan, en Namibie, en luminance totale et en luminance polarisée. Ces images illustrent l'un des avantages de la polarisation : la luminance polarisée est beaucoup moins sensible à la surface que la luminance totale. La transition entre un désert brillant et une surface désertique, plus sombre, est à peine visible sur les images composites réalisées en polarisation. C'est la diffusion par les particules atmosphériques qui domine le signal polarisé. Cette caractéristique fait de la polarisation un outil très performant pour l'étude des aérosols au-dessus des surfaces terrestres.



**Figure 16.** (a) et (b) Composition colorée réalisée à partir des mesures d'OSIRIS acquises au-dessus de la frontière du désert de l'Etosha Pan durant 2 vols différents de la campagne AEROCLO-sA. La même zone a été survolée quasiment au même moment de la journée. Les deux vols ont été réalisés les 5 (a et c) et 12 septembre (b et d) 2017 pour des charges en aérosol très différentes. Les compositions colorées ont été réalisées à partir des canaux centrés sur 490, 670 et 865 nm. Des panaches de fumée avait été transportés au-dessus du désert le 5 septembre 2017 (l'épaisseur optique mesurée dans le nord de la Namibie était de 1.5 à 500 nm). (c) et (d) compositions colorées correspondantes en polarisation. Source : Aurélien Chauvigné (post-doctorant, LOA).

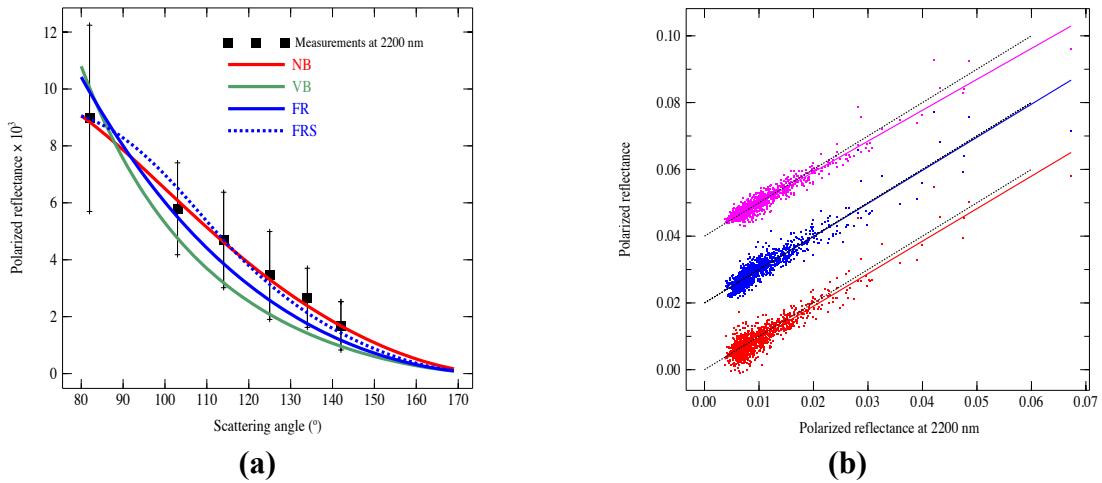
Si la réflectance polarisée des sols est faible et spatialement peu variable, elle doit tout de même être estimée. Durant ma carrière, j'ai évalué différents modèles de BPDF de surface. Pour estimer la réflectance polarisée de la surface dans mes inversions, j'ai notamment utilisé un modèle semi-empirique développé par Nadal et Bréon (1999),

$$R_p^{surf}(\theta_s, \theta_v, \varphi_r) = \alpha \left[ 1 - \exp \left( -\beta \frac{F_p(\gamma)}{\mu_s + \mu_v} \right) \right] \quad (33)$$

$F_p$  est le coefficient polarisé de Fresnel et  $\gamma$  l'angle de réflexion. Le modèle utilise deux coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  définis empiriquement. Les mesures de POLDER ont permis de tabuler ces coefficients à partir d'une classification des surfaces et de la valeur du NDVI<sup>18</sup>. Un modèle de BPDF plus récent a également été développé par Maignan et al., (2009). Ce modèle reproduit aussi bien les mesures de POLDER que le précédent modèle. Il a l'avantage de ne nécessiter qu'un seul paramètre d'ajustement et de présenter une formulation linéaire par rapport au coefficient de Fresnel. D'autres modèles ont également

<sup>18</sup> Normalized Difference Vegetation Index (NDVI)

étés développés basés sur les lois de Fresnel et évalués (Bréon et al., 1995, Waquet et al., 2009b, Litvinov et al., 2011). La figure 17-a présente un exemple des comparaisons entre mesures et modèles, issues de mes travaux (Waquet et al., 2009b).



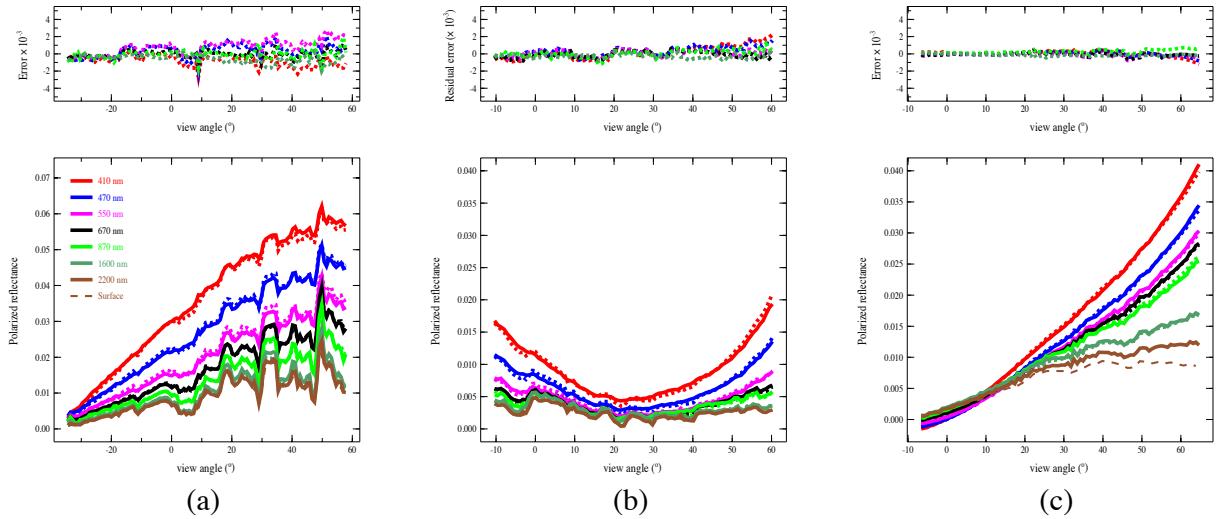
**Figure 17.** (a) Réflectance polarisée de la surface en fonction de l’angle de diffusion (mesures MICROPOL, région Nord). Valeurs moyennes et écarts-types calculés à partir de mesures acquises selon plusieurs axes de vol. Modélisation associée : ND : (Nadal et Bréon, 1999) ; VB (Bréon et al., 1995) ; FR : coefficient polarisé de Fresnel multiplié par un facteur (Eq. 18) ; FRS : FR avec une correction supplémentaire pour les effets d’ombre . (b) Réflectance polarisée de surface estimée pour différentes longueurs en fonction de la même quantité à 2200 nm : 1600 nm (en magenta), 670 nm (en bleu) et 865 nm (en rouge). Les observations à 1600 nm et 670 nm sont décalées de 0.04 et 0.02 en ordonnée, respectivement. Droites de régression linéaire (en couleur) et bissectrice (en noire). Observations combinant des géométries d’observation acquises au nadir en diffusion avant ( $70^\circ < \Theta < 140^\circ$ ).

La contribution polarisée de la surface dépend également peu de la longueur d’onde. C’est un autre avantage pour l’étude des aérosols au-dessus des surfaces terrestres. Cela a été démontré par l’analyse des mesures de POLDER entre 490 et 865 nm (Nadal et Bréon, 1999). On notera que ce résultat n’est plus valable à proximité de la rétrodiffusion ( $\Theta > 160^\circ$ ). Pour ces géométries d’observation, la réflectance polarisée de surfaces devient nulle ou faiblement négative. D’autres processus contrôlent alors la réflectance polarisée de la surface et celle-ci ne peut plus être supposée comme indépendante de la longueur d’onde. Ces observations sont typiquement exclues des inversions. Pour les autres géométries d’observation, la dépendance spectrale de la surface polarisée est principalement contrôlée par celle du coefficient de Fresnel. Ce paramètre présente une faible dépendance spectrale du visible au moyen-infrarouge (Vanderbilt, 1985). En conséquence, la réflectance polarisée de la surface devrait également présenter une faible dépendance spectrale sur une gamme spectrale large. Une partie de mes travaux de thèse a consisté à vérifier l’évolution spectrale de la réflectance polarisée des sols de visible au moyen-infrarouge avec l’instrument MICROPOL. Mes travaux ont confirmé cette caractéristique entre 670 et 2200 nm pour des surfaces végétales, comme le montre la figure 17-b, extraite de Waquet et al. (2009b). La figure présente des résultats obtenus en diffusion avant et au nadir ( $\Theta < 140^\circ$ ). Avec les mesures de MICROPOL, les différences observées sont du même ordre de grandeur que le bruit associé aux mesures. Les mesures de l’instrument RSP, plus précises, ont montré qu’il existait toutefois des effets spectraux faibles sur la réflectance polarisée entre le visible et le

moyen-infrarouge (Litvinov et al., 2011). Ces effets spectraux varient en fonction des géométries d'observation et sont de l'ordre de 10 % pour des angles de diffusion inférieurs à 120° et varient entre 10 et 30% pour des angles de diffusion compris entre 120° et 180°, et devraient être pris en compte pour des inversions encore plus précises.

#### 2.5.5. Inversion des propriétés des aérosols au-dessus des surfaces terrestres.

L'algorithme historique utilisant les mesures polarisées de POLDER a permis de quantifier les principales sources d'aérosol du mode fin au-dessus des continents (Deuzé et al., 2001). L'algorithme utilisait le modèle de Nadal et Bréon, (1999) pour estimer la réflectance polarisée de la surface. Ce modèle permet de rendre compte du comportement angulaire de la réflectance polarisée sur une gamme angulaire large (c. f. figure 17-a). Toutefois, l'utilisation de coefficients,  $\alpha$  et  $\beta$ , prescrits en fonction de la position géographique, pouvait introduire des biais dans les inversions (Waquet et al., 2007). L'amélioration proposée a consisté à utiliser un canal polarisé centré sur 2200 nm, là où l'effet de l'atmosphère est minimisé, pour mesurer la contribution de surface en polarisation afin de l'estimer dans l'ensemble des canaux spectraux. La principale hypothèse est ici de considérer que la réflectance polarisée de la surface ne dépend pas de la longueur d'onde. L'algorithme que j'ai développé en post-doctorat pour inverser les propriétés des aérosols au-dessus des terres (Waquet et al., 2009a, Cairns et al., 2009) était le prototype de la future méthode d'inversion applicable à l'instrument spatial APS, prévu par la NASA. La méthode s'appuie sur l'ensemble de mesures polarisées fournies par RSP et sur l'approximation du transfert radiatif décrite dans la section précédente (c.f. équation 19 et 20). Une méthode d'estimation optimale a été couplée à ces calculs. Elle a été utilisée pour inverser un modèle microphysique des propriétés des aérosols à partir de l'ensemble de l'ensemble de l'information polarisée fournie par ce capteur. La figure 18 montre un exemple de modélisation du signal obtenu avec cette approche et le tableau 2 donne les caractéristiques d'un modèle de particules restitué par l'algorithme.



**Figure 18.** Réflectances polarisées mesurées au niveau de l'avion par RSP (traits pleins) et simulation (en pointillé) en fonction de l'angle de visée. Scan (a) et (b) obtenus lors de la campagne ALIVE pour de faibles charges en aérosol. Scan (c) acquis au-dessus de la ville de Mexico durant la campagne MILAGRO. Les longueurs d'onde sont 0.41, 0.47, 0.55, 0.67, 0.865, 1.6 and 2.25  $\mu\text{m}$ , respectivement représentées en rouge, bleu, magenta, noir, vert et marron. La courbe en marron claire et en pointillés correspond à la contribution directe de la surface (déduite de la mesure à 2.2 microns après correction des effets résiduels de l'atmosphère). Les différences entre mesure et simulation sont représentées sur la figure du haut. Source : Cairns et al. (2009).

|                           | Epaisseur optique (à 670 nm) | $r_{\text{eff}}$ ( $\mu\text{m}$ ) | $v_{\text{eff}}$ | $m_r$       | $m_i$         | $\pi$ (à 550nm) | P (hPa)                 |
|---------------------------|------------------------------|------------------------------------|------------------|-------------|---------------|-----------------|-------------------------|
| Paramètres (incertitudes) | 0.3 (0.005)                  | 0.15 (0.005)                       | 0.485 (0.01)     | 1.54 (0.01) | 0.027 (0.005) | 0.865 (0.005)   | 627 (10) (soit ~3.8 km) |

**Tableau 2.** Paramètres des aérosols inversés à partir des mesures acquises par RSP au-dessus de la ville de Mexico. Les paramètres sont :  $r_{\text{eff}}$  et  $v_{\text{eff}}$ , respectivement le rayon effectif et la variance effective associés à la distribution en taille des aérosols (loi log-normale),  $m_r$  et  $m_i$ , respectivement les parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction complexe des aérosols,  $\pi$  l'albédo de simple diffusion des aérosols et P, la pression à associée à l'altitude moyenne de la couche d'aérosols. Les valeurs entre crochets sont les incertitudes calculées sur les paramètres avec l'équation 28, à partir des caractéristiques de RSP.

La figure 18 montre que l'approche permet de modéliser précisément les mesures de l'instrument sur une gamme spectrale large. L'épaisseur optique inversée a pu être validée à l'aide de mesures photométriques sur ce cas. Lorsque la distribution en taille est dominée par le mode fin, les erreurs observées sur l'épaisseur spectrale inversée avec cette méthode sont assez faibles ( $\approx$ 10-15% maximum). Je n'ai pas eu l'opportunité de valider le modèle microphysique inversé. Il est intéressant de noter que l'effet résiduel de l'atmosphère à 2200 nm n'est pas négligeable lorsque l'épaisseur optique augmente (figure 18-c). La méthode prend en compte une correction de l'effet de l'atmosphère à 2200 nm sur l'estimation de la

réflectance polarisée de la surface. A la fin du processus itératif, la méthode retrouve donc également la réflectance polarisée de la surface. En cela, la méthode préfigurait la méthode GRASP qui inverse simultanément les propriétés de la surface et de l'atmosphère. Les propriétés restituées pour les mesures réalisées au-dessus de la ville de Mexico (tableau 2) sont caractéristiques des particules de brûlis (partie réelle de l'indice de réfraction des aérosols assez élevée et niveau d'absorption élevé). Ces travaux ont montré qu'il était possible de restituer un modèle microphysique des propriétés des aérosols au-dessus d'une surface terrestre à partir de mesures polarisées.

Je décris brièvement l'algorithme GRASP développé par Oleg Dubovik car ces développements, effectués au LOA, correspondent à la suite logique de mes travaux. Des limitations subsistaient dans la méthode que j'ai contribué à développer pour RSP. La polarisation est principalement sensible au mode fin des aérosols. Les poussières minérales typiquement non-sphériques et grossières polarisent peu le rayonnement. Dans le cas de distribution en taille bimodale, la méthode précédente fournit uniquement les propriétés du mode fin. Afin de détecter les poussières au-dessus des zones sources, il était nécessaire d'inclure des mesures de luminance totale. Des hypothèses sur la surface demeuraient également, notamment sur la dépendance spectrale polarisée des sols. L'algorithme GRASP inverse simultanément les propriétés des aérosols ainsi que les BRDF et BPDF de la surface. Comme pour la BPDF, différents modèles de BRDF ont été évalués à l'aide des mesures de satellites tels que MODIS et SEVIRI, et permettent de modéliser la réflectance des sols (Litvinov et al., 2011). Par exemple, pour la BRDF du modèle de Ross-Li, la réflectance de surface se décompose selon 3 termes associés à 3 paramètres à inverser. Les paramètres décrivant la surface sont également inclus dans le vecteur d'état pour cette méthode. Ces paramètres sont inversés pour chaque longueur d'onde. Des matrices de lissage sont également utilisées pour inverser ces coefficients en fonction de la longueur d'onde. Dans le cadre de 3MI, pour la polarisation de la surface, une bonne stratégie consisterait à considérer que cette quantité dépend peu de la longueur, tout en lui permettant de varier spectralement dans une gamme de valeur raisonnable. Les surfaces et l'atmosphère ont des signatures directionnelles différentes en intensité. La méthode GRASP exploite cette caractéristique pour séparer la contribution de la surface de celle de l'aérosol. Afin d'améliorer l'approche, une inversion simultanée d'un groupe de pixels est réalisée. Le formalisme de la MEO est modifié afin de prendre en compte l'information provenant de pixels environnants, ou provenant de mesures acquises durant une autre journée d'observation. Les propriétés des surfaces évoluent lentement par rapport à celle des aérosols dans le temps. On peut souvent considérer aussi que les propriétés des aérosols évoluent lentement dans l'espace. Ces informations spatiales et temporelles sont exploitées dans GRASP pour mieux stabiliser l'inversion des paramètres à l'aide de matrices de lissage. Les figures 16-a et 16-b montrent bien l'apport de l'information temporelle pour la séparation des propriétés des aérosols et des surfaces. L'effet radiatif des aérosols est clairement visible le 05/09/2017 (figure 16-a), où la surface désertique du Pan d'Etosha apparaît beaucoup moins brillante que pour la journée du 12/09/2017 (figure 16-b), associée à une charge en aérosol plus faible. En inversant simultanément les deux images d'OSIRIS, on caractérisera plus précisément les propriétés des aérosols et des surfaces.

### 2.5.6. Discussion : avantages et limitations.

L'avantage des LUTs, ou des méthodes exploitant des approximations du transfert radiatif, reste leur temps de calcul, beaucoup plus faibles que pour des méthodes itératives. Ces méthodes peuvent être utilisées pour traiter les données de satellites en temps réel ce qui reste encore un avantage à l'heure actuelle. Toutefois, le nombre de modèles est nécessairement limité dans une méthode LUT ce qui peut parfois se traduire par des fluctuations dans les paramètres inversés. A l'inverse, une méthode d'estimation optimale permet d'inverser les propriétés des aérosols sans discontinuité. En plus des temps de calcul importants, celles-ci ont également d'autres limitations. Si le problème est trop non-linéaire, la méthode peut ne pas converger ou converger très lentement. Le résultat final obtenu en termes de propriétés des aérosols dépend parfois des hypothèses faites au départ. On peut tester plusieurs points de départ mais cela augmente les temps de calcul. Ce problème est lié à l'existence de solutions multiples. Le seul moyen fiable pour lever l'indétermination est d'ajouter des mesures supplémentaires, apportant une réelle contrainte nouvelle. Une LUT permet de balayer un large espace de solutions et de détecter d'éventuelles solutions multiples. J'ai personnellement souvent utilisé une LUT pour me rapprocher de la solution, cela permettant de limiter le nombre d'itération et les problèmes de convergence. Il convient de noter que des approches alternatives existent également. Une étude récente a montré que l'on pouvait également utiliser des réseaux de neurone pour remplacer avantageusement les LUTs (Dio Na et al., 2017).

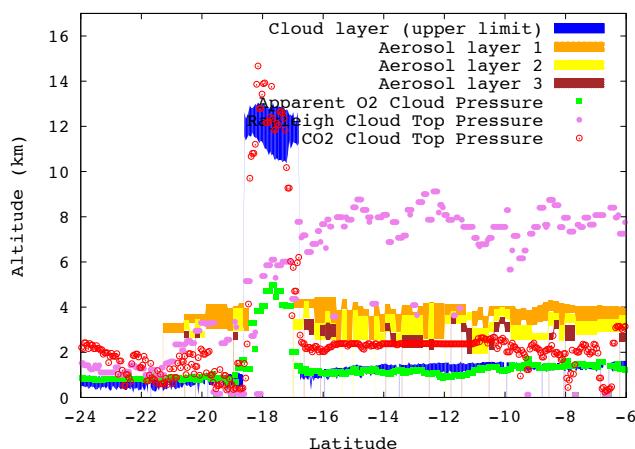
Les méthodes variationnelles permettent également de réaliser des études de sensibilité. On peut estimer les erreurs associées aux paramètres des aérosols inversés (Eq. 28) pour des caractéristiques de capteurs variés, à l'aide de mesures synthétiques. Mes travaux menés sur cette thématique m'ont amené à simuler les erreurs attendues sur les paramètres des aérosols pour un instrument de type APS ou RSP (Waquet et al., 2009a). Ces résultats et d'autres études montrent systématiquement une diminution des incertitudes associées aux paramètres inversés lorsque l'erreur associée à la mesure de la polarisation décroît. Pour les polarimètres, la gamme d'angle de diffusion échantillonnée est un critère qui contrôle également le contenu en information de façon cruciale. A information spectrale et angulaire équivalente, et pour une même méthode d'inversion, un instrument disposant d'une meilleure précision sur la mesure de la polarisation permettra d'inverser les mêmes paramètres des aérosols mais avec une plus grande précision. Une mesure de la polarisation plus précise pourrait permettre également de caractériser des couches de particules optiquement plus fines, potentiellement mal détectées à l'heure actuelle. Une mesure très précise de la polarisation nécessite également des outils de modélisation du signal, des modèles de particules et des modèles de surface toujours plus fins et sophistiqués. En contrepartie, un instrument, tel que RSP, dans sa configuration spatiale, n'aurait pas permis d'obtenir une couverture globale. Les observations obtenues, certes plus précises, auraient été limitées à la trace du satellite, à l'instar d'un lidar. Comme expliqué dans ce chapitre, la précision associée aux paramètres inversés dépend de la précision des mesures mais également de la méthode d'inversion. Un capteur permettant une couverture globale permet des approches d'inversion originale comme la méthode GRASP. Celle-ci utilise des observations multi-pixels et multi-temporelles pour mieux caractériser les aérosols. Cela nécessite d'observer les mêmes cibles à différentes périodes de l'année et d'intégrer les informations relatives à un groupe de pixels ce qui est difficilement réalisable avec un capteur disposant d'une fauchée limitée. Il y a donc des avantages et des limitations pour ces différents concepts instrumentaux, à mettre en balance avec les derniers développements réalisés pour les méthodes inverses.

## 2.6. Aérosols au-dessus des nuages

### 2.6.1. Détection à l'aide de mesures passives polarisées.

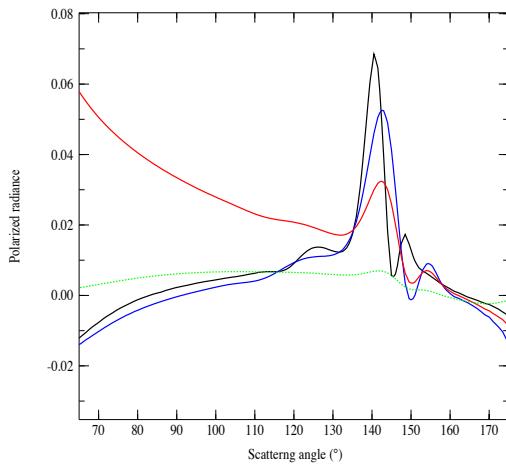
Les aérosols issus des feux de biomasse peuvent être injectés à hautes altitudes dans l'atmosphère (2-7 km) et être transportés au-dessus des nuages. D'autres aérosols comme les poussières minérales sont également souvent observées au-dessus des nuages. Les premières études menées sur le sujet ont montré que les aérosols présents au-dessus des nuages affectent la précision avec laquelle sont inversées les propriétés des nuages depuis l'espace (Haywood et al., 2004). Cet effet n'est pas pris en compte dans les algorithmes opérationnels dédiés à l'étude des nuages et cela peut biaiser les estimations de l'effet indirect des aérosols. Les aérosols absorbants réduisent la quantité de lumière réfléchie par les nuages vers l'espace, conduisant à un effet radiatif direct positif (c.f. chapitre 1). De façon générale, l'étude des aérosols au-dessus des nuages est critique pour comprendre les effets radiatifs des aérosols et des nuages.

Mes travaux m'ont conduit à développer une nouvelle méthode pour détecter les aérosols au-dessus des nuages à l'aide des mesures de l'A-Train (Waquet et al., 2009c). Les couches d'aérosols transportées au-dessus des nuages ont été initialement détectées à cause de leurs effets perturbants sur les estimations de la pression de sommet des nuages, estimées à partir de mesures passives. La figure 19 montre l'altitude du sommet du nuage estimée avec le lidar CALIOP, et celles dérivées à l'aide de mesures passives avec (i) la méthode « Rayleigh » qui utilise des mesures polarisées spectrales (Goloub et al. 1994), (ii) la méthode « oxygène » utilisant une différence d'absorption dans la bande A de l'oxygène (Vanbause et al. 2003) et (iii) la méthode « infrarouge » qui utilise de mesures dans l'infrarouge thermique (Menzel et al. 2006). Lorsque des aérosols de feux de biomasse sont transportés au-dessus des nuages, la méthode « Rayleigh » restitue une altitude pour le sommet du nuage bien supérieure à l'estimation fournie par CALIOP (courbe entre -16 et -6° en latitude).



**Figure 19.** Positions verticales des couches d'aérosol et des nuages dérivées des mesures du lidar spatial CALIOP en fonction de la latitude (traits pleins). Altitudes du sommet du nuage estimées à l'aide de différentes techniques de télédétection passive (points). Cas d'étude présentant une couche d'aérosol transportée au-dessus d'un banc de stratocumulus, dans la région de l'Atlantique Sud Est. Source : Waquet et al. (2009c).

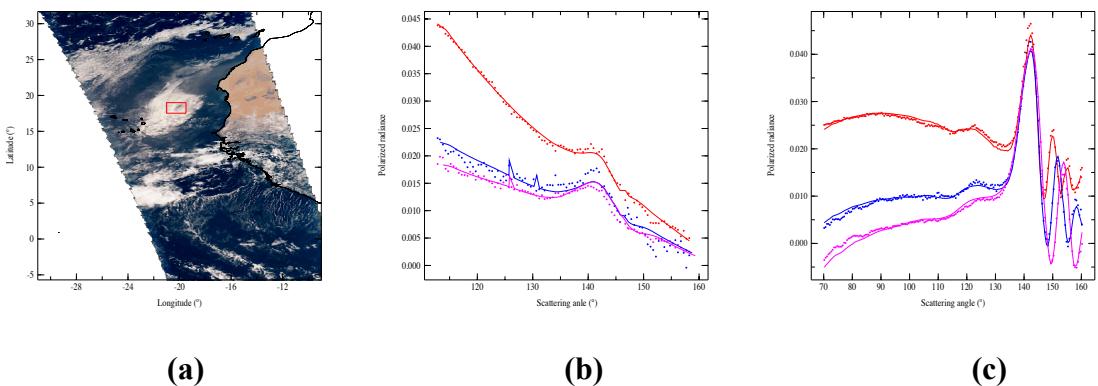
La méthode « Rayleigh » utilise les mesures de luminances polarisées à 490 et 865 nm, pour estimer l'altitude du sommet du nuage. Les molécules situées au-dessus du nuage polarisent fortement le rayonnement par diffusion à 490 nm et très peu à 865 nm. Le signal des molécules dans le nuage étant négligeable, la différence entre les mesures polarisées acquises à 490 nm et à 865 nm (pour  $\Theta < 130^\circ$ ) permet de retrouver l'épaisseur optique moléculaire au-dessus du nuage, et par suite, l'altitude du sommet du nuage, le profil moléculaire étant connu précisément. Pour des scènes nuageuses, survolées par des aérosols, on observe une création de polarisation à 865 nm pour les angles de diffusion inférieurs à  $130^\circ$  qui perturbe la méthode Rayleigh. La figure 20 illustre la sensibilité de la mesure passive polarisée à la présence des aérosols au-dessus des nuages. Pour des angles de diffusion supérieurs à  $130^\circ$ , la signature polarisée du nuage se caractérise par la présence d'arcs dont les positions et les amplitudes dépendent de la distribution en taille des gouttelettes (rayon effectif et variance effective). Pour les angles de diffusion inférieurs à  $130^\circ$ , le signal polarisé est faiblement négatif et dépend peu des propriétés du nuage. Par contre, les particules du mode fin polarisent fortement la lumière pour la gamme d'angle de diffusion  $90-130^\circ$  ce qui explique l'origine de ce signal additionnel. Les poussières minérales particulières contribuent au mode grossier non-sphérique des aérosols et polarisent peu la lumière. Toutefois, lorsque ces particules sont transportées au-dessus des nuages, elles diminuent l'amplitude de l'arc primaire (c.f. figure 20, courbe verte). Cet effet d'atténuation peut être exploité pour estimer l'épaisseur optique des couches de poussières minérales transportées au-dessus des nuages. Ces deux effets, création de polarisation par diffusion, et effet d'atténuation dans l'arc primaire sont les principaux processus permettant la détection des aérosols au-dessus des nuages qu'ils soient dans le mode d'accumulation ou dans le mode grossier.



**Figure 20.** Luminances polarisées à 865 nm modélisées à partir du code SOS en fonction de l'angle de diffusion pour un cas de nuage seul (en noir), d'aérosols du mode fin au-dessus du nuage (en rouge) et de poussières minérales non-sphériques au-dessus du nuage (vert). Les gouttelettes du nuage ont un rayon effectif de 20 microns pour la courbe noire. Le rayon effectif des gouttelettes est de 10 microns pour les courbes bleu et rouge. L'épaisseur optique des aérosols est égale à 2.0 pour les poussières et de 0.3 pour les particules du mode fin à 865 nm.

L'analyse des mesures polarisées de RSP acquises pour des scènes nuageuses durant la campagne MILAGRO au Mexique avait montré cet effet, attestant de la présence d'aérosol au-dessus des nuages dans cette région (Knobelspiesse et al., 2011). C'est toutefois l'analyse

des données POLDER, acquises au-dessus de l'Atlantique Sud-Est, qui a révélé l'ampleur du phénomène. Dans un premier article (Waquet et al., 2009c), j'ai utilisé une méthode basée sur la diffusion simple (c.f. équation 17) pour modéliser la luminance polarisée diffusée par les aérosols et restituer l'épaisseur optique des aérosols de feux de biomasse transportés au-dessus des nuages. Dans un deuxième article, l'analyse des scènes nuageuses localisées au large du Sahara a permis de mettre en évidence les effets des poussières minérales sur la signature polarisée des nuages (Waquet et al., 2013a). Dans cette dernière publication, j'ai également proposé un algorithme expérimental permettant d'inverser simultanément les propriétés des aérosols et des nuages. La technique a consisté à agréger les données POLDER à une échelle spatiale de  $200 \times 200 \text{ km}^2$ . J'ai nommé cette méthode, l'approche « hyper-pixel ». Une méthode similaire a été initialement utilisée par Bréon et Goloub (1998) pour restituer le rayon effectif et la variance effective des gouttelettes à partir des données polarisées de POLDER. En agrégeant les données, on obtient une résolution angulaire fine qui est déterminante pour la caractérisation des arcs nuageux. L'agrégation des données permet également de réduire le bruit et d'augmenter considérablement le contenu en information disponible. En contrepartie, la méthode ne peut être appliquée que pour des zones nuageuses homogènes et les propriétés inversées sont des propriétés nécessairement moyennes. J'ai analysé ces données « hyper-pixel » à l'aide d'une méthode d'estimation optimale, couplée avec un code de Mie pour décrire les propriétés optiques du nuage et avec un code permettant de calculer les propriétés optiques des particules sphéroïdes pour les aérosols. Avec cette méthode, il est possible de restituer simultanément le rayon effectif et la variance effective des nuages ainsi que l'épaisseur optique et la taille du mode fin des aérosols. Dans le cas de poussières minérales, on peut également inverser l'épaisseur optique de la couche mais il faut prendre en compte un modèle de particules non-sphériques. L'indice de réfraction complexe des aérosols est difficilement estimable avec ces mesures. Il convient de faire des hypothèses sur ces paramètres. La figure 21 montre un exemple de mesures de type « hyper-pixel ». Deux cas ont été sélectionnés, l'un présentant de fortes charges en poussières minérales transportées au-dessus d'un nuage (et potentiellement dans le nuage) et un cas avec peu d'aérosol au-dessus du nuage.



**Figure 21.** (a) Composition colorée réalisée pour le 25/07/2008 à partir de canaux spectraux de l'instrument POLDER centrés sur 490, 670 et 865 nm et position de l'hyper-pixel (cadre rouge). (b) Mesures polarisées associées à un cas de poussières minérales transportées dans une scène nuageuse et modélisation obtenue après inversion (trait plein). Les canaux spectraux sont centrés sur 490 (rouge), 670 (bleu) et 865 nm (magenta). (c) Cas sans aérosol, présentant un arc secondaire.

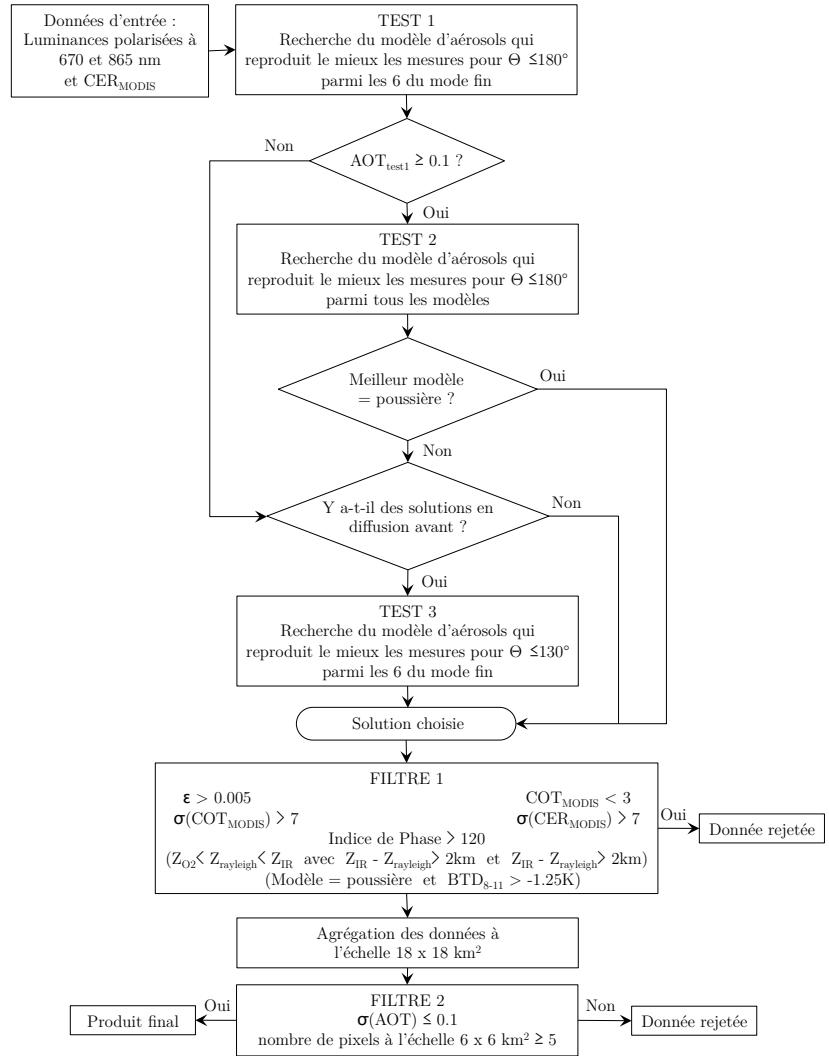
Les amplitudes des arcs surnuméraires dépendent de la largeur de la distribution en taille des

gouttelettes (i.e. variance effective). Elles sont intenses dans le cas d'une distribution en taille de goutte restreinte. Un avantage de la méthode, qui inverse simultanément les propriétés des deux couches de particules, est de prendre en compte l'effet d'atténuation des aérosols sur les amplitudes des arcs. C'est un point important car il est nécessaire de pouvoir restituer précisément les propriétés des aérosols et des nuages pour ce type de scènes où des interactions sont possibles par le sommet du nuage. Une limitation de cette méthode a été observée lors de l'éruption volcanique islandaise de 2010. Le panache de cendres transporté au-dessus de nuage d'eau liquide était suffisamment optiquement épais pour éteindre l'arc primaire généré par les nuages sous-jacents (Waquet et al., 2014). Ce phénomène, assez rare, se produit pour des épaisseurs optiques en aérosol supérieures à 2. La sensibilité à l'épaisseur optique des poussières est alors perdue.

### 2.6.2. Construction d'un algorithme opérationnel.

Le travail suivant a consisté à développer une version opérationnelle de cet algorithme, permettant un traitement global des aérosols au-dessus des nuages. Une méthode de type LUTs a été développée. L'utilisation de ce type d'approche se justifie encore pleinement dans le cadre du traitement de scènes encore mal appréhendées depuis l'espace telles que les scènes nuageuses contaminées par des aérosols. La méthode inverse les propriétés des aérosols au niveau du pixel ( $6 \times 7 \text{ km}^2$ ) et fournit l'épaisseur optique des aérosols et le coefficient d'Angström. Six modèles de particules du mode fin et un modèle de poussières ont été inclus dans les LUTs. Des LUTs de luminances polarisées calculés avec le code des OS ont été générées. La figure 22 présente le schéma de principe de l'algorithme opérationnel développé pour l'étude des aérosols au-dessus des nuages avec POLDER.

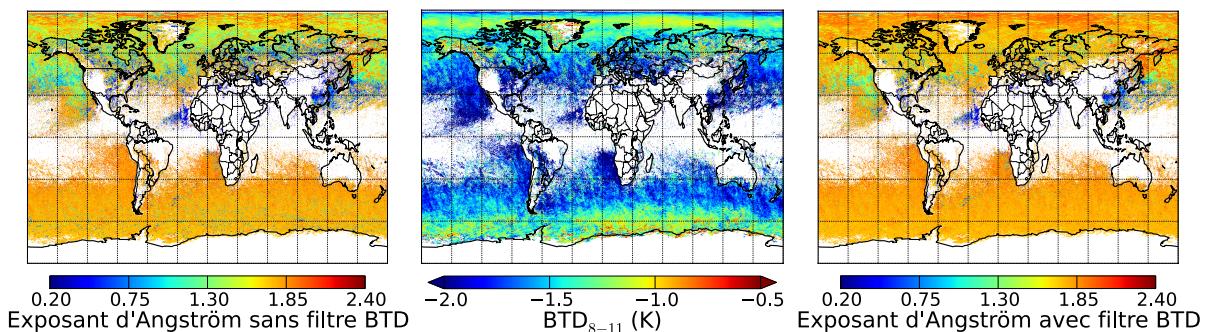
Un premier test est réalisé afin de déterminer une estimation de l'épaisseur optique. En fonction de cette valeur, une stratégie d'inversion est mise en place. Pour les faibles charges en aérosol (épaisseur optique  $< 0.1$  à 865 nm), la méthode exclut le modèle de poussières minérales car la sensibilité de la méthode à ces aérosols devient alors trop limitée. Autre spécificité, l'inversion n'utilise pas la même gamme d'angle de diffusion pour restituer les propriétés des aérosols en fonction du type d'aérosol. Pour les poussières, l'arc primaire est exploité quantitativement dans l'inversion. Si l'unique modèle de poussières ne permet pas de reproduire les mesures, la base des modèles est alors restreinte aux aérosols du mode fin et l'inversion est réalisée à l'aide de mesures acquises pour des angles de diffusion inférieurs à 130°. L'objectif était d'avoir la meilleure précision possible pour l'inversion des propriétés des aérosols du mode fin. Sur cette plage angulaire, la création de polarisation par diffusion par les aérosols du mode fin est maximale et les hypothèses faites sur la microphysique de nuages sont quasiment sans effet sur les résultats. Par contre, les effets radiatifs tridimensionnels des nuages impactent la modélisation de l'arc primaire. Ces effets ne sont pas pris en compte par le code des OS et augmentent avec le degré d'hétérogénéité de la scène nuageuse. Les calculs réalisés avec le code 3DMCPOL ont permis de quantifier cet effet. Même en se limitant aux scènes nuageuses les plus homogènes (c.f. figure 22 pour les critères de sélection), il existe des biais résiduels qui sont de l'ordre 7-8% dans l'arc primaire (i.e. entraînant une surestimation de l'épaisseur optique des poussières de 20%). L'inversion de l'épaisseur optique des poussières ne peut être réalisée sans l'utilisation des mesures acquises dans l'arc. J'ai donc choisi de limiter l'utilisation de cette mesure uniquement à l'inversion des propriétés des couches de poussières. A cause de l'existence des effets radiatifs tridimensionnels des nuages, les pixels associés aux bords des nuages et à des couvertures fractionnées ont été exclus des inversions.



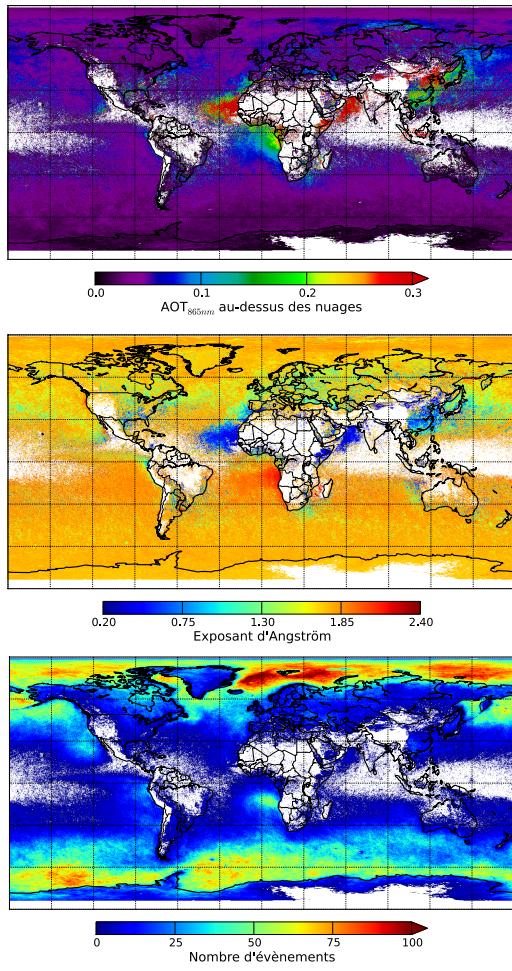
**Figure 22.** Représentation de l'algorithme opérationnel utilisé pour inverser les propriétés des aérosols au-dessus des nuages à partir des mesures polarisées de POLDER. Adapté de Waquet et al. (2013a).

La dernière partie de la méthode a consisté à mettre en place des filtres permettant d'obtenir un produit opérationnel fiable à l'échelle globale. J'ai travaillé avec une étudiante en thèse (Fanny Peers) sur cette partie. Ces premiers travaux ont permis de définir différents filtres. Comme expliqué plus haut, la méthode ne peut être appliquée que pour des nuages liquides, homogènes et associées à des épaisseur optiques supérieure à 3. Pour mettre en place des filtres adaptés, nous avons bénéficié d'une chaîne de traitement, développée au LOA, combinant les données POLDER et MODIS (chaîne « PML2 » développée par l'équipe IRN). Les propriétés des nuages inversées par MODIS (épaisseur optique et rayon effectif) à une échelle spatiale fine (1 km × 1 km) ont été moyennées à l'échelle du pixel POLDER (6 km × 7 km au nadir). Cela nous a permis de définir de critères sur la variabilité des propriétés des nuages sous le pixel POLDER, notamment sur l'épaisseur optique et le rayon effectif des gouttelettes. Des valeurs « seuil » ont été fixées sur les écarts-types associés à ces paramètres de façon empirique. Les données associées à des scènes nuageuses trop hétérogènes ont été éliminées du produit. D'autres critères sur les propriétés des scènes nuageuses observées ont également été imposés. La fraction nuageuse sous pixel doit être

égale à 100% et les nuages doivent être des nuages d'eau liquide. Un indice de phase nuageuse a été développé à partir des données de POLDER et MODIS (Riedi et al., 2010). La phase des nuages conduit à des signatures différentes sur les mesures de ces instruments. L'ensemble de l'information disponible a été résumé sous la forme d'un indice de phase variant entre 0 et 240, identifiant les nuages de phase liquide, mixte et de glace. L'algorithme ne traite que les valeurs d'indice entre 0 et 120, correspondant à des nuages d'eau liquide. Un algorithme de détection des aérosols au-dessus des nuages doit également disposer d'un masque permettant d'éliminer les cirrus fins, très présents au-dessus des nuages d'eau liquide (c.f. figure 19, un cirrus est observé vers 12 km d'altitude). Les poussières minérales et les cirrus correspondent à des particules grossières non-sphériques et leurs signatures en polarisation sont proches et les cas de fausse détection sont nombreux. Toutefois, les poussières et les nuages de glace ont des signatures différentes dans l'infrarouge thermique. La différence de température de brillance (BTD), calculée entre les canaux MODIS centrés sur 8 et 11 microns a été utilisée pour filtrer le cirrus. Dans la dernière version de l'algorithme (Waquet et al., 2013b), les événements dont la BTD est supérieure à -1.25 K sont rejettés si le modèle d'aérosols retenu correspond aux poussières. La carte de droite de la figure 23 représente les exposants d'Angström obtenus après application de ce dernier critère. Des événements associés à des valeurs d'Angström faibles et correspondant à des cirrus sont éliminés. L'ensemble des filtres appliqués réduit fortement la quantité de données mais ce traitement était nécessaire afin de fournir les paramètres des aérosols au-dessus des nuages de façon précise au niveau global.



**Figure 23.** Effet du filtre sur la différence de température de brillance (BTD) à 8 et 11  $\mu\text{m}$  sur l'inversion de l'exposant d'Angström des aérosols au-dessus des nuages de Mars à Mai 2008. Source : thèse de F. Peers.

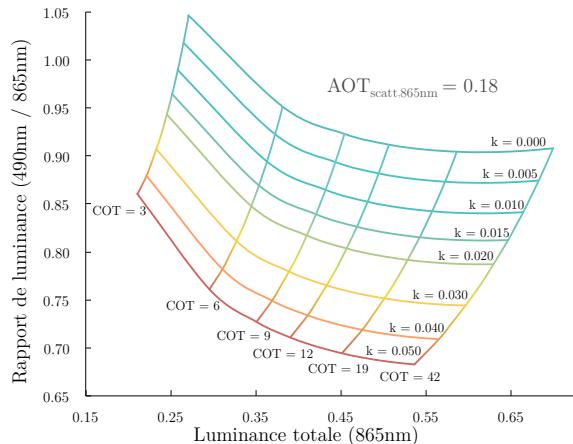


**Figure 24.** Distribution des aérosols au-dessus des nuages en 2006. De haut en bas : épaisseur optique des aérosols à 865 nm, exposant d'Angström et nombre d'évènements. Source : Waquet et al., (2003b).

La distribution globale et saisonnière des aérosols au-dessus des nuages a pu être étudiée avec cette méthode Waquet et al., (2013b). Les résultats pour l'année 2006 sont représentés sur la figure 24. En résumé, il y a deux grandes régions pour l'étude des aérosols anthropiques : la région localisée au-dessus de l'Atlantique sud est et celle localisée au dessus du Pacifique nord, avec des charges maximales observées à proximité de l'Asie. Cette dernière région est sous l'influence de différents types d'aérosol (aérosols de pollution essentiellement, mais aussi parfois des aérosols de feux de biomasse et des poussières minérales). Quatre régions se distinguent pour l'étude des poussières minérales au-dessus des nuages : la région de l'Atlantique nord localisée au large du Sahara, le sud de la Chine (au printemps), la mer d'Arabie et, plus surprenant, la corne de l'Afrique (Ethiopie). La variabilité sur les paramètres des aérosols au-dessus des nuages est saisonnière et également parfois annuelle. Un transport d'aérosols du mode fin (potentiellement anthropique) a notamment été détecté au-dessus du pôle Nord pour le printemps 2008 (c.f. figure 33). Une statistique globale a pu être réalisée pour le mode fin des aérosols. Les particules du mode fin des aérosols, localisées au-dessus de nuages, augmentent de 25% (+/-6 %) l'épaisseur optique globale pour ces particules, toutes scènes océaniques et terrestres confondues. C'est un résultat important, car ces aérosols, survolant les nuages, étaient jusqu'ici négligés dans les statistiques issues des observations spatiales.

### 2.6.3. Absorption des aérosols au-dessus des nuages.

En l'absence d'aérosols au-dessus des nuages, la luminance rétrodiffusée par les gouttelettes nuageuses est peu dépendante de la longueur d'onde de l'UV à l'infrarouge (De Graaf et al., 2012). En revanche, dans ce domaine de longueurs d'onde, la luminance est sensible à la diffusion et à l'absorption des aérosols, dont la variation spectrale dépend fortement de la microphysique des particules. Ainsi, la présence d'aérosols au-dessus des nuages entraîne une modification de la luminance spectrale au sommet de l'atmosphère. Ce processus se traduit par une modification de la couleur apparente du nuage. La figure 25 illustre l'augmentation du contraste spectral lorsque l'absorption des aérosols croît : comme l'épaisseur optique d'absorption des aérosols du mode fin est plus forte aux courtes longueurs d'onde, le rapport des luminances décroît lorsque l'absorption des aérosols augmente. Cet effet est la base des méthodes développées pour les instruments MODIS et OMI, afin de restituer l'épaisseur optique des aérosols absorbants au-dessus des nuages à partir de luminances (c.f. tableau 3). Cet effet appelé « rapport de couleur » est lié à la présence d'aérosols absorbants et ne permet donc pas de détecter des aérosols diffusants présents au-dessus des nuages.

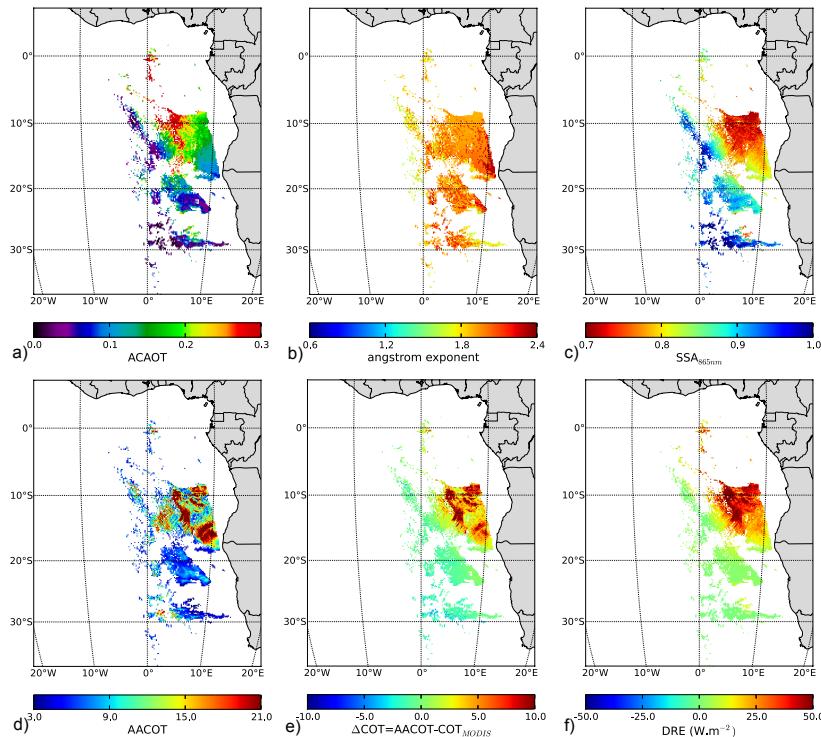


**Figure 25.** Rapport des luminances à 490 et 865 nm en fonction de la luminance à 865 nm. Les modélisations ont été réalisées à partir du code de l'adding-doubling pour une couche d'aérosols du mode fin (rayon effectif de  $0.10 \mu\text{m}$ ) au-dessus d'un nuage (gouttelettes de rayon effectif de  $10 \mu\text{m}$ ). Plusieurs épaisseurs optiques du nuage (COT) et épaisseurs optiques d'absorption des aérosols ont été considérées. L'épaisseur optique de diffusion des aérosols est fixée à 0.18 à 865 nm pour ces simulations. Le paramètre  $k$ , variant de 0 à 0.05, correspond à l'absorption des aérosols (i.e. partie imaginaire de l'indice de réfraction complexe des aérosols). Lorsque  $k$  augmente, l'épaisseur optique d'absorption augmente également.

De plus, pour une valeur donnée du rapport de luminance, la luminance à 865 nm « apporte » la sensibilité à l'épaisseur optique du nuage. Ainsi, les luminances à 490 et 865 nm peuvent être utilisées pour déduire simultanément l'épaisseur optique d'absorption des aérosols et l'épaisseur optique du nuage dès lors que la distribution en taille des aérosols et leur épaisseur optique de diffusion sont connues. Une partie des travaux de thèse de Fanny Peers a consisté à utiliser de façon complémentaire, les luminances totales et polarisées mesurées par POLDER, pour déterminer simultanément les propriétés d'absorption des aérosols au-dessus des nuages et l'épaisseur optique des nuages. La première étape consiste à déterminer la taille des aérosols et leur épaisseur optique de diffusion à partir des mesures

polarisées et de la méthode décrite dans la section précédente. L'épaisseur optique de diffusion est recalculée à partir de l'albédo de simple diffusion du modèle d'aérosols utilisé pour les LUTs en polarisation. La seconde étape consiste à déterminer l'épaisseur optique d'absorption des aérosols ainsi que l'épaisseur optique du nuage à partir des luminances totales à 490 et 865 nm en exploitant les effets illustrés sur la figure 25. La principale hypothèse de cette approche est de considérer que les luminances polarisées ne sont pas sensibles à l'absorption des aérosols. Ce qui revient à considérer que l'hypothèse utilisée pour les LUTs en polarisation (absorption des aérosols fixée à 0.01) n'influe pas sur l'estimation de l'épaisseur optique de diffusion des aérosols. L'impact de cette hypothèse sur les résultats n'est pas négligeable et a été discuté dans Peers et al., (2015). Par exemple, la précision avec laquelle l'albédo de simple diffusion des aérosols est inversé avec cette méthode est limitée à 0.05 à 550 nm. C'est cette approximation du transfert radiatif qui a toutefois permis un traitement global de l'absorption des aérosols au-dessus des nuages permettant, par la suite, l'estimation des forçages associés et l'évaluation des modèles du climat (c.f. section 2.7).

Une procédure de calcul de l'effet direct des aérosols a été ensuite développée en utilisant les propriétés aérosols issues de ces inversions. La figure 26 montre un exemple des produits journalier fournis pour les aérosols au-dessus des nuages. Ces travaux ont fait l'objet d'un article dans ACP (Peers et al., 2015).



**Figure 26.** ACAOT : Épaisseur optique des aérosols inversée au-dessus des nuages à 865 nm à partir des données de l'instrument POLDER. SSA : albédo de simple diffusion des aérosols. ACCOT : épaisseur optique des nuages sous-jacents.  $\Delta COT$  différence entre l'ACCOT et l'épaisseur optique du nuage estimée par l'algorithme opérationnel développé par MODIS. Inversions réalisées le 4 août 2008. DRE : forçage instantané au sommet de l'atmosphère. Source : Peers et al. (2015).

Ces résultats confirment que les aérosols de feux de biomasses africaines sont probablement les aérosols les plus absorbants à l'échelle globale (i.e. faibles valeurs de SSA de l'ordre de 0.80 à 865 nm). Le forçage direct des aérosols au-dessus des nuages a été estimé à +33.5 W.m<sup>-2</sup> en moyenne sur cette zone pour août 2008. La valeur avancée correspond à une valeur moyennée sur un mois, estimée à l'heure de passage de POLDER. L'ordre de grandeur de cette valeur a été confirmée par une autre étude utilisant les mesures de l'instrument SCIAMACHY (De Graaf et al., 2014). On peut également noter les différences importantes entre les épaisseurs optiques des nuages inversées avec notre méthode et celles fournies par l'algorithme opérationnel MODIS (c.f. figure 26-e). La méthode MODIS (opérationnelle) ne prend pas en compte les aérosols au-dessus des nuages. Les nuages apparaissent moins brillants qu'ils ne le sont en réalité, à cause de la couche d'aérosols absorbants. L'épaisseur optique des nuages sur la région de l'Atlantique sud est (juin-octobre) est sous-estimée par les algorithmes opérationnels d'une valeur proche de 4, en moyenne. C'est un biais significatif, bien supérieur par exemple, aux biais liés à la non prise en compte de certains effets radiatifs tridimensionnels des nuages. La méthode permet donc également de progresser sur la connaissance des propriétés des nuages. Cinq années de données acquises par l'instrument POLDER ont été traitées avec ces deux algorithmes. Ces données sont désormais diffusées par l'intermédiaire du centre de gestion de données spatiales de Lille (ICARE).

Une première analyse de la distribution planétaire annuelle des propriétés d'absorption des aérosols au-dessus des nuages et de leur effet direct a déjà été réalisée (thèse de Fanny Peers). En plus du réchauffement observé dans la région de l'Atlantique sud est (33 W.m<sup>-2</sup>), des forçages positifs sont également souvent observés aux hautes latitudes au printemps dans l'hémisphère Nord (>15 W.m<sup>-2</sup>). Ces valeurs sont associées à des couches de particules du mode fin absorbantes transportées au-dessus des nuages, probablement issues des feux de forêt boréale. Le forçage des poussières minérales au-dessus des nuages est souvent négatif et peut atteindre régionalement des valeurs de l'ordre de -15 W.m<sup>-2</sup>. Le forçage global des aérosols au-dessus des nuages n'a pas encore été estimé et reste l'une des perspectives majeures de ces travaux. Avant d'effectuer ce calcul, il semble toutefois important de chercher à valider les résultats obtenus avec l'instrument POLDER et de les comparer à d'autres mesures fournies par différents capteurs.

#### 2.6.4. Comparaison des propriétés des aérosols inversées au-dessus des nuages à l'aide de mesures passives et actives.

La suite de ces travaux a porté sur la comparaison des résultats « aérosol au-dessus des nuages » obtenus avec le lidar CALIOP et avec l'instrument POLDER. La validation des propriétés des aérosols inversées au-dessus des nuages n'est pas réalisable depuis la surface, de façon classique, à l'aide de mesures photométriques. L'objectif était tout d'abord de vérifier la cohérence des résultats fournis par ces deux instruments très différents. Une approche novatrice a été développée pour le lidar spatial CALIOP, appelée méthode « dépolarisation ». Celle-ci permet de restituer l'épaisseur optique des aérosols au-dessus des nuages sans faire d'hypothèses microphysiques sur les propriétés des aérosols (Hu et al., 2007a). Cette méthode est sensible à l'ensemble des aérosols (absorbant ou diffusant) et s'applique aux nuages d'eau liquide optiquement épais. Une relation approchée est toutefois utilisée pour estimer le signal rétrodiffusé par les gouttelettes du nuage. Cette méthode était donc très intéressante pour évaluer les résultats de l'algorithme POLDER, qui utilise des hypothèses sur les propriétés des aérosols, mais qui dépend peu des propriétés de nuages. La comparaison de ces produits a fait l'objet d'une partie des travaux de la thèse de Lucia Deaconu que j'ai encadrée au LOA. Ces travaux ont aidé à développer un produit

opérationnel SODA<sup>19</sup> pour CALIOP (en collaboration avec D. Josset, NASA) et ont permis l'écriture d'un article (Deaconu et al., 2017). Je détaille ci-dessous les bases théoriques de la méthode « dépolarisation » et résume les principaux résultats obtenus.

Un nuage opaque (épaisseur optique > 3.0) atténue complètement le signal émis par le lidar. En l'absence d'aérosol au-dessus du nuage, l'expression théorique de l'intégrale du coefficient de rétrodiffusion atténué pour une couche nuageuse opaque,  $\gamma'_{\text{water,calc}}$ , s'écrit (Platt, 1979) :

$$\gamma'_{\text{water,calc}} = \int_{z_{\text{top}}}^{z_{\text{base}}} \beta'(z) dz = (2\eta_c S_c)^{-1} \quad (\text{Eq. 34})$$

avec  $\beta'(z)$  le coefficient de rétrodiffusion atténué ( $\text{km}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ ),  $\eta_c$  un coefficient caractérisant la diffusion multiple dans le nuage et  $S_c$  le rapport lidar pour les gouttelettes du nuage. Le rapport lidar est donné par

$$S_c = \frac{4\pi}{\varpi \times p(180^\circ)} \quad (\text{Eq. 35})$$

avec  $\varpi$  l'albédo de simple diffusion des particules nuageuses (égal à 1.0 à 532 nm pour de l'eau) et  $p(180^\circ)$  la valeur de la fonction de phase en rétrodiffusion. Ce rapport dépend peu de la taille des gouttelettes pour des gouttes de tailles inférieures à 50 microns et est fixé à 19 sr (O'Connor et al., 2004, Pinnicwck et al., 1983).  $z_{\text{base}}$  et  $z_{\text{top}}$  correspondent respectivement aux altitudes de la base et du sommet du nuage.

Le coefficient de diffusion multiple ( $\eta_c$ ) est relié au rapport de dépolarisation  $\delta'$ . Cette dernière quantité est définie comme le rapport des coefficients de rétrodiffusion atténués mesurés sur les voies polarisées parallèlement et perpendiculairement ( $\delta' = \frac{\beta_\perp}{\beta_{\parallel}} \times 100$ ). La

diffusion multiple dans le nuage modifie la direction de polarisation du faisceau laser initial (parallèle) et dépolarise donc le rayonnement. Une relation approchée, issue de simulations, permet de relier le coefficient de diffusion multiple à la dépolarisation mesurée dans le nuage (Hu et al., 2006):

$$\eta_c = \left( \frac{1 - \delta'}{1 + \delta'} \right)^2 \quad (\text{Eq. 36})$$

On peut noter que comme  $\delta'$  est un rapport, il n'est pas affecté par l'effet d'atténuation de la couche d'aérosol survolant le nuage.

---

<sup>19</sup> SODA : Synergized Optical Depth of Aerosols

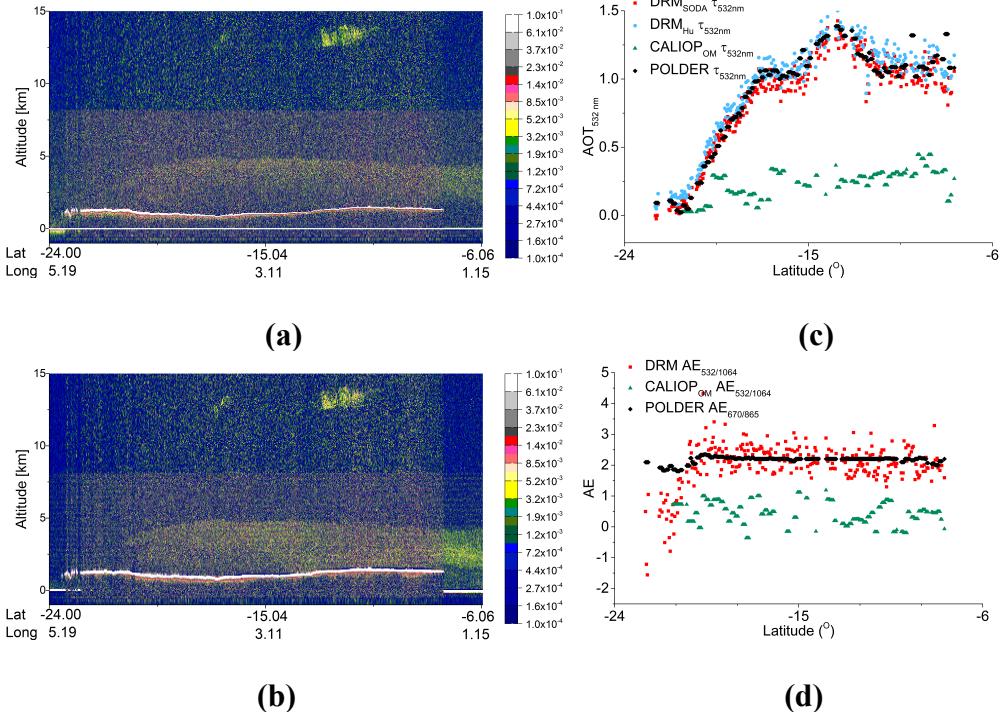
En supposant l'étalonnage du lidar parfaitement caractérisé et après avoir corrigé la mesure de l'absorption par les gaz, le rapport des quantités  $\gamma'$ , mesurée et calculée, dépend uniquement de l'effet d'atténuation de la couche d'aérosol localisée au-dessus du nuage et s'écrit,

$$\frac{\gamma'_{\text{water}}}{\gamma'_{\text{water,calc}}} = T^2 = \exp(-2\tau_{\text{top,DR}}) \quad (\text{Eq. 37})$$

avec  $T$ , un terme de transmission, estimé entre le sommet du nuage et le capteur. La formule donnant l'épaisseur optique de la couche d'aérosol s'exprime alors comme,

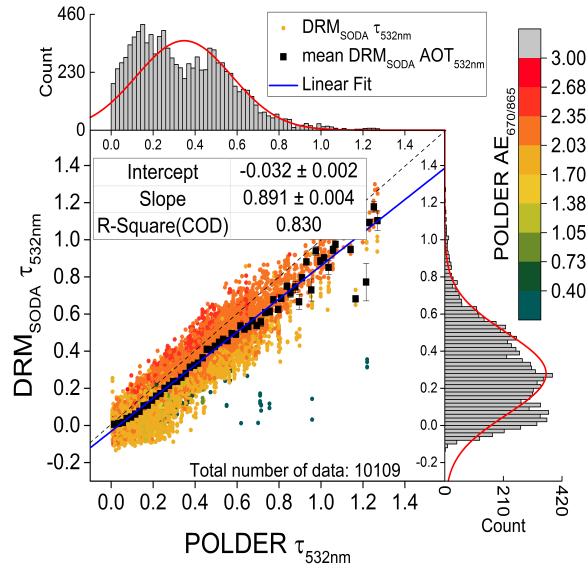
$$\tau_{\text{top,DR}} = \frac{-1}{2} \ln(2S_c \gamma'_{\text{water}} \eta_c) \quad (\text{Eq. 38})$$

Les observations acquises par CALIOP pour des nuages d'eau liquide (sans aérosol) ont été ensuite utilisées pour « calibrer » la méthode. Des biais apparaissaient entre théorie et observations notamment pour la relation reliant la dépolarisation et le coefficient de diffusion multiple. La relation (Eq. 36) a été modifiée pour reproduire les observations de CALIOP. Dans cette nouvelle version, la valeur du rapport lidar ( $S_c$ ) est également ajustée en fonction de la latitude. Cette dernière modification prend en compte des imprécisions de l'étalonnage de CALIOP qui varient avec la latitude (Powell et al., 2010). Le produit SODA (développé par D. Josset, NASA) correspond à l'épaisseur optique en aérosol au-dessus des nuages estimée avec la version calibrée de la méthode Hu et al., (2007a). Les filtres permettant un traitement global et les modifications apportées à la méthode sont décrites dans Deaconu et al., (2017). La figure 27 montre un exemple des épaisseurs optiques inversées à l'aide de ces différentes méthodes pour un cas d'étude. Les épaisseurs optiques en aérosol inversées par POLDER se situent entre celles estimées par le produit SODA et celles estimées avec la méthode originale de Hu et al., (2007a). Les épaisseurs optiques fournies par la méthode opérationnelle développée pour CALIOP sont beaucoup plus faibles. Cette méthode sous-estime systématiquement l'épaisseur optique des aérosols transportés au-dessus des nuages. Une première étude comparative (Jethva et al., 2013), à laquelle j'ai participé, a permis d'expliquer l'origine du problème. La méthode opérationnelle CALIOP a besoin de déterminer précisément les altitudes de la base et du sommet de la couche d'aérosol afin d'intégrer verticalement le coefficient d'extinction. Dans le cas de couches de particules de feux de biomasse optiquement épaisses, le signal du lidar rétrodiffusé à 532 nm est fortement atténué et la sensibilité à la base de la couche est perdue. L'épaisseur optique de ces aérosols dépend fortement de la longueur d'onde. A 1064 nm, l'effet d'atténuation de ces aérosols est diminué et on peut estimer plus précisément la base de la couche. Cet effet est visible sur la figure 27 qui montre les mesures du lidar CALIOP aux deux longueurs d'onde (532 et 1064 nm). A 1064 nm, la base de la couche apparaît plus basse de 500 mètres. L'algorithme opérationnel développé pour CALIOP, utilisant uniquement le canal à 532 nm de façon quantitative, sous-estime systématiquement l'altitude de la base de la couche des aérosols, l'épaisseur géométrique de la couche et par suite l'épaisseur optique des aérosols au-dessus des nuages.



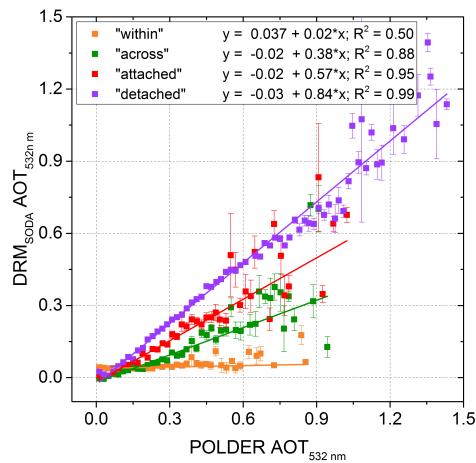
**Figure 27.** (a) et (b) coefficients de rétrodiffusion atténueés mesurés par CALIOP à 532 et 1064 nm, respectivement. (c) épaisseur optique des aérosols inversée à 532 nm par POLDER (méthode polarisation) par CALIOP avec la méthode « dépolarisation » (DRM), avec une version « calibrée » de cette méthode (DRM<sub>SODA</sub>), et enfin avec l'algorithme opérationnel (CALIOP<sub>OM</sub>). (d) Même comparaison mais pour le coefficient d'Angström (AE) calculé entre 532 et 1064 nm. Source : thèse de Lucia Deaconu.

Les comparaisons réalisées pendant la thèse de Lucia Deaconu ont porté sur 4.5 années de données globales. Une originalité de l'étude est de comparer les résultats de ces algorithmes en fonction du type de particules et de la distribution verticale (couche d'aérosol et nuage en contact ou séparées). Les résultats obtenus sont très encourageants pour les particules de feux de biomasse observées dans l'Atlantique sud. Les régressions linéaires indiquent une bonne corrélation entre les produits POLDER et SODA sur cette région (c.f. figure 28). Les résultats sur les régions nuageuses influencées par des poussières montrent également de bonnes corrélations mais il existe un biais. L'épaisseur optique inversée par POLDER est en moyenne plus forte de 0.1 à 865 nm environ par rapport au produit SODA. L'utilisation d'un unique modèle de poussières minérales dans les LUTs utilisé pour l'algorithme POLDER reste une limitation. Les biais liés à la modélisation de l'arc primaire en polarisation pourraient également être responsables de ces écarts (i.e. effets 3D et erreurs liées à la troncature, non corrigées à l'époque, c. f. section 2.4.2). Les corrélations entre les deux méthodes se dégradent également sur la région du Pacifique Nord qui est une région sous l'influence de plusieurs types d'aérosol, et où des mélanges sont possibles. L'utilisation d'un nombre limité de modèles d'aérosols dans les LUTs (6 modes fins et un modèle de poussières minérales bimodale) ne permet probablement pas de bien prendre en compte des cas de mélange.



**Figure 28.** Comparaison des épaisseurs optiques en aérosol à 532 nm inversées à partir de la méthode CALIOP SODA ( $\text{DRM}_{\text{SODA}}$ ) et POLDER. Le coefficient d'Angström (« POLDER AE ») estimé à partir des canaux de POLDER centrés sur 670 and 865 nm est également reporté (échelle de couleur en haut à droite). Les mesures ont été acquises pour une période de 6 mois (mai à octobre 2008) et pour une région centrée sur l'Atlantique sud. Les histogrammes présentent la distribution des données. Source : thèse de Lucia Deaconu, (2017).

Un autre résultat de cette étude est l'effet de la distribution verticale des couches sur les inversions réalisées avec les méthodes POLDER et CALIOP SODA. La figure 29, également extraite de la thèse de L. Deaconu montre les résultats de ces comparaisons en fonction de la position verticale des couches.



**Figure 29.** Comparaison globale des épaisseurs optiques en aérosols inversées au-dessus de nuages. Moyennes des épaisseurs optiques CALIOP SODA ( $\text{DRM}_{\text{SODA}}$ ) et POLDER à 532 nm pour la période de juin 2006 à décembre 2010, réalisée sous la trace du lidar CALIOP. Quatre situations différentes sont considérées : aérosols séparés du nuage (« detached », en violet), aérosols en contact avec le sommet du nuage (« attached », en rouge), couches d'aérosol partiellement dans le nuage (« across », en vert) et aérosols à l'intérieur du nuage (« within », en orange).

L'approche considérée pour séparer ces scènes s'inspire des travaux menés par Costantino et Bréon (2013). Cette étude a utilisé les données CALIOP pour séparer les cas de contacts entre aérosols et nuages, des cas sans contact, que j'appellerai « détachés » dans la suite. Cette étude a montré que le rayon effectif des gouttelettes décroît fortement avec l'épaisseur optique des aérosols dans les cas de contact sur la région de l'Atlantique sud (effet indirect des aérosols). Comme rappelé précédemment, il y a une incertitude sur l'estimation de l'altitude de la base de la couche d'aérosol. Dans cette dernière étude, la distance entre la base de la couche d'aérosol et le sommet du nuage doit être de l'ordre de 500 mètres pour définir un cas « détaché ». Nous avons suivi un protocole similaire (Deaconu et al., 2017). Pour les cas détachés, un bon accord est systématiquement observé entre les résultats POLDER et CALIOP SODA. Pour les cas de contact, la corrélation diminue et les différences sur les épaisseurs optiques inversées augmentent. Les situations présentant des aérosols dans le nuage sont très incertaines et sont typiquement éliminées dans les données CALIOP. Le signal du lidar est rapidement atténué dans un nuage opaque et il est peu probable que les mesures d'un lidar puissent être utilisées pour sonder les aérosols à l'intérieur d'un nuage. Il est toutefois intéressant de remarquer que les effets observés pour les cas de contact s'accentuent lorsque que des aérosols seraient présents au sommet du nuage (cas « across » et cas « within », c.f. figure 29). L'hypothèse avancée pour expliquer ces différences est de postuler la présence d'aérosols dans le nuage. Les travaux menés par L. Deaconu ont montré que la présence d'aérosols localisés dans la partie haute du nuage peut générer de la luminance polarisée. L'effet sur la luminance polarisée est similaire à celui créé par une couche d'aérosol placée au-dessus du nuage, mais à épaisseur optique égale, l'amplitude de l'effet est moins importante. En déplaçant la couche d'aérosol plus bas dans le nuage, la sensibilité à la présence des aérosols est rapidement perdue. Concernant la méthode CALIOP SODA, celle-ci pourrait être perturbée par la présence de suie dans les gouttelettes, affectant le rapport lidar (c.f. Eq. 35). D'autres hypothèses ne sont pas à exclure également. Ces situations pourraient s'expliquer, par exemple, par des couvertures fractionnées, mal détectées par les algorithmes actuels. Les mesures des campagnes aéroportées effectuées dans l'Atlantique sud-est permettront probablement de valider ou d'invalider ces hypothèses. Des mesures in-situ ont notamment été effectuées dans les nuages dans le cadre du projet CLARIFY, à proximité de l'île de l'Ascension (c.f. figure 7). Les premiers résultats ont montré que des particules de feux de biomasse sont parfois présentes dans la couche limite et dans les nuages. L'analyse plus approfondie de ces données révélera peut-être l'état de mélange des aérosols et des gouttes d'eau (interne ou externe).

Les résultats obtenus pour des couches détachées, sans être une véritable validation, donne confiance dans les produits POLDER et CALIOP SODA. A l'inverse, les résultats de la méthode opérationnelle développée par CALIOP, dans sa version actuelle, ne permettent pas d'obtenir les propriétés des aérosols au-dessus des nuages. Les résultats obtenus avec la cette méthode opérationnelle concernant les aspects climatiques (exemple : estimation du forçage direct des aérosols) doivent être reconstruits. Certains aspects des résultats de ces comparaisons ne sont pas encore bien compris. Un point notamment mérite d'être mentionné. Des valeurs d'épaisseurs optiques en aérosol non négligeable (0.04 à 865 nm) sont fréquemment restituées par l'algorithme POLDER à l'échelle globale. Ainsi l'écart global moyen entre les épaisseurs optiques inversées par POLDER et par la méthode SODA, est estimé à +0.07 (à 532 nm) pour les cas détachés. La méthode dépolarisante non calibrée donne un écart global moyen avec POLDER de -0.07 pour les mêmes situations (Deaconu et al., 2017). Les incertitudes associées à l'étalonnage de CALIOP ne permettent pas de conclure sur ce point. Ma position est de considérer qu'il reste une imprécision dans la

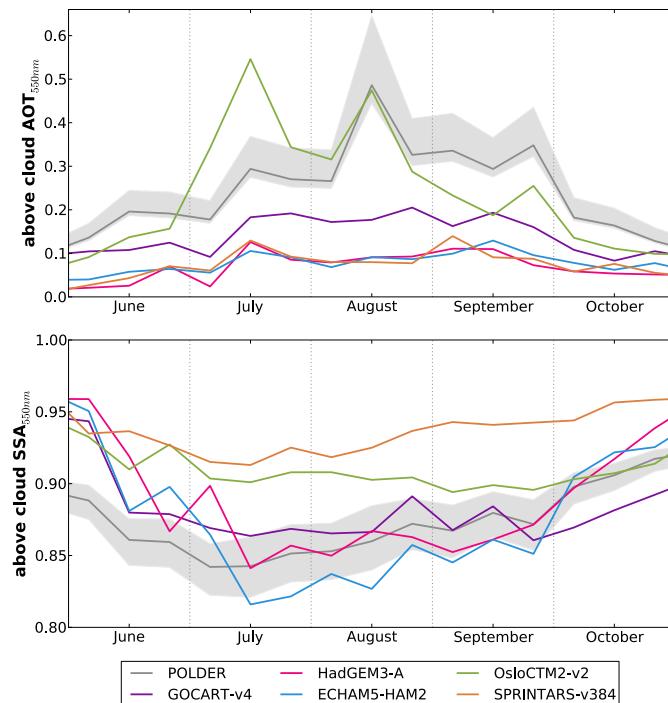
méthode que j'ai contribué à développer pour POLDER qui crée ces valeurs faibles. Celles-ci peuvent être liées à la méthode, à la mesure où la modélisation (effets 3D résiduels). Les produits issus de ces algorithmes, pour des valeurs d'épaisseur optique en aérosol inférieures à 0.05 à 865 nm, doivent donc être analysées avec prudence. Une explication géophysique n'est pas à exclure également, bien que moins probable selon moi. La présence d'aérosols ou fines gouttelettes, localisée à proximité du sommet du nuage, pourrait générer un signal polarisé additionnel. Encore une fois, des mesures aéroportées (de type photométrique par exemple) réalisées au ras des nuages pourraient permettre de répondre à ces questions.

| Méthode et instrument  | Mesures  | Paramètres restitués                            |
|--|--|---|
| <b>Mesures actives</b>   |  |   |
| CALIOP Méthode opérationnelle (Winker et al., 2009, Young and Vaughan, 2009)           | Profils des coefficients de rétrodiffusion atténus à 532 et 1064 nm.   | AOT à 532 nm                                    |
| CALIOP « dépolarisation » (Hu et al., 2007a)   | Coefficient de rétrodiffusion atténué, intégré entre la base du nuage et le sommet du nuage (à 532 et 1064 nm)<br>Rapport de dépolarisation à 532 nm intégré sur la couche nuageuse. | AOT et Angström                                 |
| CALIOP SODA (version calibrée de la méthode « dépolarisation ») (Deaconu et al., 2017) | Même chose   | AOT et Angström                                 |
| CALIOP « color ratio » (Chand et al., 2008)  | Coefficient de rétrodiffusion atténué, intégré entre la base du nuage et le sommet du nuage (à 532 et 1064 nm)   | AOT et Angström                                 |
| <b>Mesures passives</b>  |  |   |
| POLDER « polarisation » (Waquet et al., 2009)  | Luminance polarisée à 865 nm et 670 nm   | AOT et Angström                                 |
| OMI (Torres et al., 2012)  | Luminance totale à 388 nm et UVAI (indice d'aérosol)   | AOT et COT (hypothèses sur le modèle d'aérosol) |
| MODIS « color ratio » (Jethva et al., 2013)  | Luminance totale à 470 et 860 nm   | AOT et COT (hypothèses sur le modèle d'aérosol) |
| MODIS (Meyer et al., 2015)   | Luminance totale à 470, 550, 660, 860, 1240 et 2100 nm   | AOT, COT et rayon effectif des gouttes          |
| SCHIAMACHY (De Graaf et al., 2012)   | Spectre en luminance   | Forçage des aérosols                            |

**Tableau 3.** Liste des différentes méthodes spatiales développées pour l'étude des aérosols au-dessus des nuages à partir de mesures passive ou active. AOT : Aerosol Optical Thickness, COT : Cloud Optical Thickness.

## 2.7. Comparaison avec les modèles du climat.

Les propriétés des aérosols inversées avec ces nouvelles méthodes ont été notamment utilisées, régionalement, pour évaluer la fiabilité de la représentation des aérosols au-dessus des nuages dans les modèles du climat AeroCom. Le projet AeroCom (AEROSol model interCOMparison) est un projet international, initié, en 2002 dont le but est de comprendre la nature des différences observées entre les modèles du climat. La figure 30 montre le résultat des comparaisons entre les données POLDER et 5 modèles du climat, sur la région de l'Atlantique sud est de juin à octobre.



**Figure 30.** Série temporelle de l'épaisseur optique et de l'albédo de simple diffusion des aérosols au-dessus des nuages inversés par l'instrument POLDER et estimés à l'aide de 5 modèles du climat appartenant au projet AeroCom. Partie grisée : incertitudes sur les paramètres restitués par la méthode développée pour POLDER. Source : Peers et al. (2016)

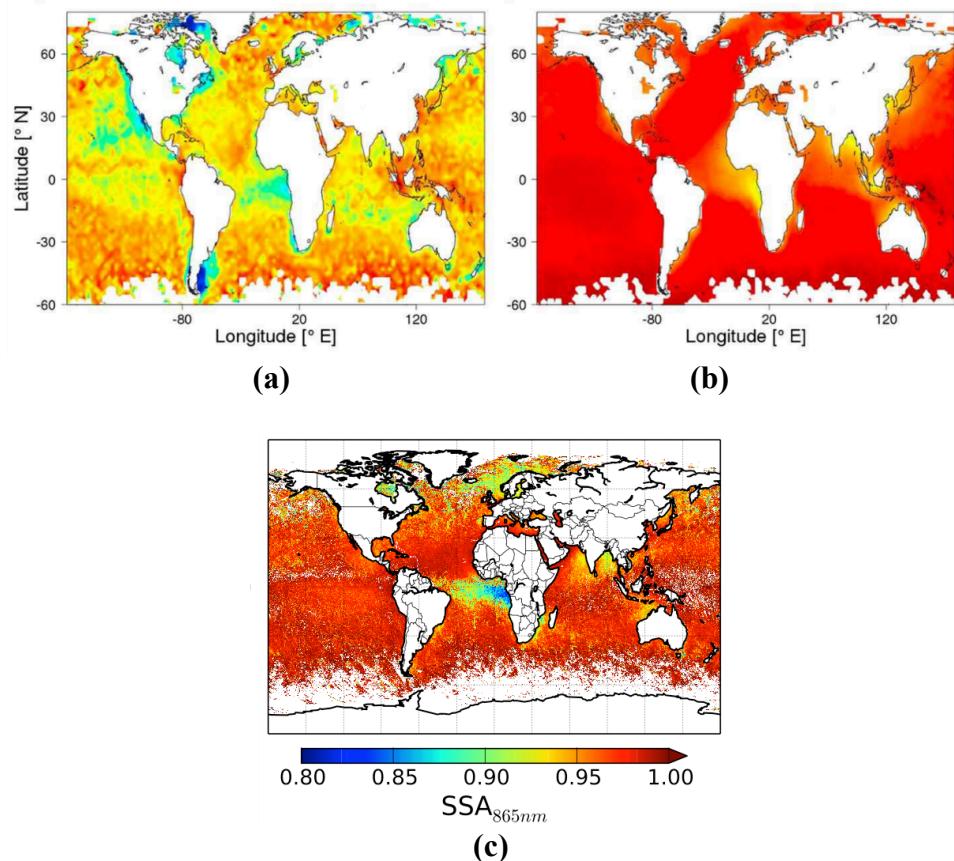
La réponse des modèles du climat dans cette région présente une grande diversité notamment sur l'amplitude du forçage direct des aérosols. Il y a même un désaccord sur le signe du forçage. Les travaux menés sur cette thématique depuis 2009 et le travail de thèse de Fanny Peers ont permis d'apporter un premier diagnostique sur la capacité de modèles à reproduire la charge et les propriétés d'absorption des aérosols au-dessus de nuages. L'avantage du produit POLDER reste évidemment sa couverture spatiale. Les résultats obtenus montrent que la plupart des modèles sous-estiment l'épaisseur optique des aérosols au-dessus des nuages dans cette région. Seul le modèle « Oslo » parvient à reproduire l'ordre de grandeur de l'épaisseur optique des aérosols et sa variabilité temporelle. Dans la plupart des cas, les épaisseurs optiques données par ce modèle sont toutefois en dehors des barres d'incertitudes associées aux données POLDER (bandes grises). On retrouve un cycle dans l'absorption des aérosols à la fois dans les observations et les modèles, qui est probablement lié au cycle de vie du carbone suivi dans cette région. Le SSA diminue entre juin et juillet (aérosols plus absorbants) pour ensuite ré-augmenter progressivement. Certains modèles sous-estiment l'absorption des aérosols (ou surestiment le SSA) comme le modèle « Oslo » et « SPRINTARS ». Comme rappelé dans le chapitre d'introduction, le forçage direct des aérosols dépend de 3 paramètres : l'épaisseur optique, l'albédo de simple diffusion des aérosols et l'albédo de la cible sous-jacente (au premier ordre, c'est l'épaisseur optique du nuage qui contrôle son albédo). Le forçage direct des aérosols ne peut être estimé correctement par ces 5 modèles car ils ne permettent pas de simuler à la fois l'épaisseur optique des aérosols et leur absorption. L'épaisseur optique des nuages est un également un paramètre important pour le calcul du forçage direct. Ce paramètre n'a pas été contrôlé mais pourrait l'être à l'aide des données issues de ces nouveaux algorithmes. La comparaison a également souligné l'importance de la hauteur d'injection des aérosols et de la paramétrisation associée au transport vertical des aérosols pour pouvoir reproduire la charge

en aérosol dans les modèles. Les modèles utilisant un indice de réfraction pour les suies, présentant une partie imaginaire plus élevée, comme suggérée par Bond et Bergström (2006) reproduisent mieux les données de POLDER. La prise en compte de l'absorption dans les modèles pour ces aérosols de brûlis reste un challenge. Je reviendrai sur ce point dans mon projet de recherche.

J'ai également réalisé une comparaison indirecte entre les résultats obtenus pour l'absorption des aérosols au-dessus des océans en ciel clair, avec ceux obtenus par les modèles AeroCom. La figure 31 illustre les résultats d'une étude de comparaison entre les observations de POLDER pour le SSA (albédo de simple diffusion) et les SSAs donnés par les modèles du climat AeroCom (Lacagnica et al., 2015). La méthode utilisée pour inverser les données POLDER/PARASOL au-dessus de l'océan est celle développée par Hasekamp et al. (2011). Je n'ai pas participé à cette étude mais, j'ai intégré une discussion dans Waquet et al., (2015) afin de comparer mes résultats à ces travaux. La méthode que j'ai utilisée pour analyser les données de POLDER est celle décrite dans la section 2.5.2. Je rappelle que la principale hypothèse de ma méthode est de considérer que seules les particules du mode fin des aérosols absorbent à 670 et 865 nm. La figure 31-c présente les résultats obtenus avec ma méthode pour le SSA, on notera que celle-ci est identique à la figure 13-b, et qu'elle est reportée ici pour faciliter la comparaison. La méthode décrite par Hasekamp et al., (2011) utilise une hypothèse différente pour l'absorption des aérosols. L'absorption des aérosols est restituée séparément sur les deux modes. La méthode inverse simultanément les propriétés des aérosols et de la surface (i.e. vitesse et direction du vent, concentration en chlorophylle) avec une méthode d'estimation optimale (c.f. section 2.5.3). Elle utilise les canaux centrés sur 490, 670, 865 et 1020 nm et l'ensemble des mesures polarisées.

Le SSA est une quantité qui dépend de la longueur d'onde. La comparaison est donc ici qualitative car le SSA est inversée à 865 nm au-dessus de l'océan en ciel clair avec la méthode Waquet et al., (2015) alors que les valeurs de Lacagnica et al., (2015) sont données à 550 nm. La comparaison permet toutefois de dégager certaines tendances observées entre modèles et observations. Les cartes de valeurs moyennes de SSA montrent différentes régions avec des valeurs de SSA s'écartant de l'unité, indiquant des aérosols absorbants : l'Atlantique sud est, la partie de l'océan indien bordant l'Inde, les régions côtières qui longent l'est de l'Afrique du sud, le nord ouest de l'Australie, la baie du Bengale, la mer d'Okhotsk et la baie d'Hudson. Toutes ces régions, sont associées à des valeurs de SSA inférieures à 1.0 à la fois dans les modèles et dans les inversions réalisées avec POLDER et ceux pour les deux méthodes. Le caractère absorbant des aérosols est parfois également plus marqué dans les modèles que dans les observations (exemple : mer jaune et mers entourant l'Indonésie). Les principales différences entre les résultats de Lacagnina et al., (2015) et ceux issus de mes travaux apparaissent pour les régions océaniques éloignées. Citons par exemple, la région localisée entre les côtes de l'Afrique du sud et de l'Australie (latitudes > -30°) ou la région localisée au-dessus de l'océan Pacifique tropical. Pour ces régions, mes résultats indiquent des aérosols des SSA proches de 1.0 alors que les valeurs données dans Lacagnina et al., (2015) indiquent des valeurs proches de 0.9. Ces événements sont typiquement associés à de faibles valeurs en épaisseur optique et l'inversion du SSA est donc moins précise. Il est donc difficile de conclure sur ces différences. Les deux méthodes développées pour POLDER s'accordent toutefois sur la présence récurrente de particules absorbantes aux hautes latitudes dans l'hémisphère Nord (au printemps). Ces événements ne semblent pas pris en compte dans les modèles du climat. Les deux méthodes confirment que l'absorption des aérosols dans l'Atlantique sud-est est également sous-estimée ce qui corrobore les résultats de Peers et al., (2015). La méthode GRASP et celle développée pour l'instrument OMI fournissent également des estimations du SSA au-dessus des océans en ciel clair. Une comparaison des résultats fournis par ces différentes méthodes et capteurs est

en cours qui permettra de mieux caractériser les incertitudes associées à ce paramètre.



**Figure 31.** (a) Distribution moyenne annuelle du SSA à 550 nm, inversés avec les données fournies par POLDER et avec l'algorithme Hasekamp et al., (2011). Valeur moyenne pour l'année 2006. (b) Valeurs moyennes du SSA correspondantes données pour les modèles AEROCOM. Sources : Lacagnina et al., (2015). (c) Même quantité à 865 nm inversées à partir des données POLDER et l'aide de la méthode Waquet et al., (2015) également pour l'année 2006.

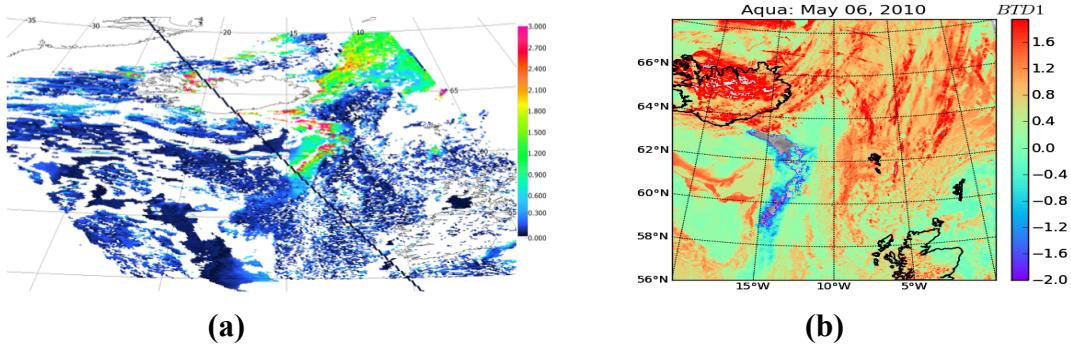
### **3. Projet de recherche et perspectives**

De façon générale, mes futurs travaux de recherche s'inscriront dans la continuité des travaux précédents et vont principalement porter sur l'amélioration des méthodes inverses permettant d'étudier plus avant les propriétés des aérosols, des nuages et leurs effets sur le rayonnement, et par voie de conséquence, sur le climat. Plus précisément, les thèmes portant sur l'absorption spectrale des aérosols, les effets des aérosols absorbants sur les nuages et le climat, et l'étude des interactions aérosols-nuage seront au cœur de ces futurs travaux. Les principaux outils d'observation que je compte utiliser à l'avenir vont principalement impliquer les futurs capteurs embarqués sur la plateforme MetOp-SG, incluant le polarimètre 3MI, et l'instrumentation aéroportée actuelle et future. Je compte m'intéresser également dans les prochaines années à d'autres capteurs tels que les radiomètres géostationnaires et les futures polarimètres et lidars spatiaux. Je compte également progressivement renforcer mes collaborations avec les modélisateurs et, potentiellement aussi avec des spécialistes de la mesure *in situ*, afin d'améliorer les méthodes de télédétection et de réduire les incertitudes sur les effets des aérosols.

#### **3.1. Synergie entre la polarisation et l'infrarouge thermique pour l'étude des situations multicouches.**

Mes travaux précédents ont permis une première quantification des propriétés des aérosols transportés au-dessus des nuages. Toutefois, il existe naturellement des limitations à ces travaux. Un grand nombre de scènes nuageuses, potentiellement contaminées par des aérosols, ne sont actuellement pas traitées. Les filtres appliqués sont trop restrictifs, en particulier celui appliqué sur l'indice de phase des nuages, qui élimine souvent des événements extrêmes en aérosol. Le panache volcanique issu de l'éruption de l'Eyjafjöll en 2010 a souvent été transporté au-dessus de nuages. La présence de ce panache optiquement épais a perturbé la détection de la phase des nuages sous-jacents. Les observations indiquaient des valeurs d'indice de phase souvent égales à 240 (i.e. phase indéterminée). J'ai observé le même problème pour des événements extrêmes (fortes épaisseurs optiques) en aérosol de feux de biomasse en Asie du sud est (Vietnam, Laos, sud de la Chine) se produisant au printemps (Hsu et al., 2003). Ces cas d'étude sont actuellement éliminés de nos traitements. Mon objectif, à terme, est de traiter l'ensemble des situations multicouches avec un seul algorithme sans distinction sur la phase des nuages. La méthode utilisant la polarisation, développée initialement pour les aérosols, inclura également des modèles de cirrus. Je compte travailler en collaboration avec l'équipe IRN du LOA sur cette thématique. Une synergie entre les mesures polarisées et des mesures dans l'infrarouge thermique sera considérée afin de séparer les différents types de scènes (aérosols ou cirrus au-dessus des nuages). La figure 32 illustre la complémentarité de la combinaison de la polarisation et de l'infrarouge thermique pour la détection des scènes multicouches. La structure du panache volcanique est aisément repérable sur la différence de température de brillance (valeurs négatives sur la figure 32b). Dans les inversions de l'épaisseur optique des aérosols réalisées avec la polarisation, on peut noter d'autres structures, détectées au-dessus de nuages, localisées au nord-est de l'Islande (figure 32a). La signature radiative de ces couches dans l'infrarouge thermique ne correspond pas à celle des aérosols volcaniques. Ces couches sont très probablement des cirrus qui présentent une signature polarisée très proche des poussières volcaniques, de part leur taille et leur caractère non-sphérique. Je compte développer pour 3MI un algorithme opérationnel et rapide de détection des scènes multicouches basé sur ces principes. Les mesures dans l'infrarouge thermique pourront être

fournies par les instruments IASI-NG ou METimage, embarqués comme 3MI sur MetOp-SG.



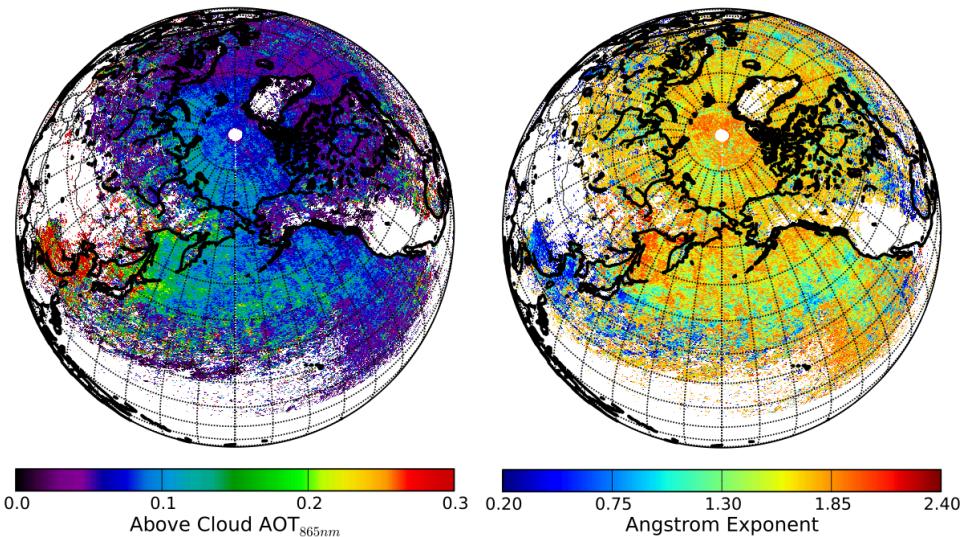
**Figure 32.** (a) Epaisseurs optiques inversées au-dessus des nuages et en ciel clair pendant l'éruption de l'Eyjafjöll en 2010. Source : Waquet et al., (2014). (b) Détection du même panache à l'aide de mesures dans l'infrarouge thermique de MODIS. Source : Dubuisson et al. (2014).

### 3.2. Amélioration de l'inversion simultanée des propriétés microphysiques des aérosols et des nuages.

Comme indiqué dans la partie « résultat », il y a des améliorations à apporter à l'algorithme opérationnel développé pour l'étude des aérosols au-dessus des nuages (Waquet et al., 2013a), en particulier sur la description de la microphysique des aérosols. Il serait tout à fait possible d'améliorer la méthode en augmentant le nombre de modèles dans les LUTs. Toutefois, il me semble plus intéressant de traiter les scènes précédemment identifiées à l'aide des algorithmes de dernière génération. L'algorithme de recherche que j'ai décrit dans Waquet et al. (2013a) ou l'algorithme GRASP (Dubovik et al., 2011), dans une version modifiée, pourrait être utilisé pour ce travail. Je pourrais également inclure dans mes algorithmes, à l'avenir, des contraintes spatiales et temporelles pour l'inversion des propriétés des aérosols au-dessus des nuages. Cela soulève un certain nombre de questions qu'il faudra aborder à plus ou moins court terme. Si les propriétés des aérosols et certaines propriétés microphysiques des nuages (rayon effectif) évoluent lentement dans l'espace, l'épaisseur optique des nuages, par contre, évolue très rapidement spatialement. De plus, à l'inverse des surfaces terrestres, les propriétés des nuages (altitude, épaisseur optique) sont différentes d'une journée à une autre pour un même pixel. Les données d'OSIRIS acquises durant AEROCLO-sA pourraient être utilisées pour tester une version de l'algorithme GRASP modifiée pour l'étude des « scènes aérosol au-dessus des nuages ». Les travaux menés sur AEROCLO-sA montre qu'il est notamment possible d'inverser les propriétés des aérosols en utilisant une image entière d'OSIRIS ( $20 \text{ km} \times 20 \text{ km}$ ), tout en inversant les propriétés optiques des nuages au niveau du pixel (travaux de post-doctorat de A. Chauvigné). La méthode exploite le contraste existant entre les différentes cibles nuageuses observées dans l'image (nuages plus ou moins brillants), pour séparer encore plus efficacement des propriétés des aérosols et des nuages.

Un autre problème se pose concernant la prise en compte de l'albédo des scènes situées sous les nuages. Actuellement, l'inversion de l'absorption des aérosols au-dessus des nuages est uniquement réalisée au-dessus de scènes océaniques sombres. La méthode pourrait être adaptée aux événements observés au-dessus des surfaces continentales en prenant en compte l'albédo de la surface dans les calculs. Les propriétés de surface déterminées à partir de l'algorithme GRASP (en ciel clair) pourraient être utilisées en données d'entrée de la

méthode. La méthode en polarisation fonctionne parfaitement au-dessus des surfaces très réfléchissantes (nuage + glace) et a permis de détecter le transport d'aérosol au pôle Nord (figure 33). La méthode permettant d'estimer l'absorption des aérosols devrait être également modifiée pour prendre en compte l'albédo de la glace (ou de la neige) se trouvant sous les nuages pour ces régions. C'est un point important car nous savons désormais que ces aérosols sont absorbants (c.f. partie « résultats »). Ils sont donc susceptibles d'exercer un forçage positif additionnel sur cette région sensible. L'instrument MODIS utilise des canaux dans le moyen-infrarouge ( $> 1600$  nm) pour estimer l'épaisseur optique des nuages au-dessus de la glace (i.e. ces canaux présentent une moindre sensibilité à l'albédo de la glace et de la neige). Dans le cadre de 3MI, il serait intéressant d'utiliser ces mêmes canaux pour estimer l'épaisseur optique des nuages et se concentrer sur l'inversion de l'albédo de la glace dans les canaux visibles (490 et 670 nm par exemple) en effectuant des hypothèses sur l'absorption des aérosols. Mon objectif à terme serait de calculer le forçage direct des aérosols présents au pôle Nord et aux hautes latitudes de l'hémisphère Nord.



**Figure 33.** Épaisseur optique et exposant d'Angström des aérosols au-dessus des nuages en Arctique et au nord de l'Océan Pacifique, de Mars à Mai 2008. Source : Waquet et al., (2013b).

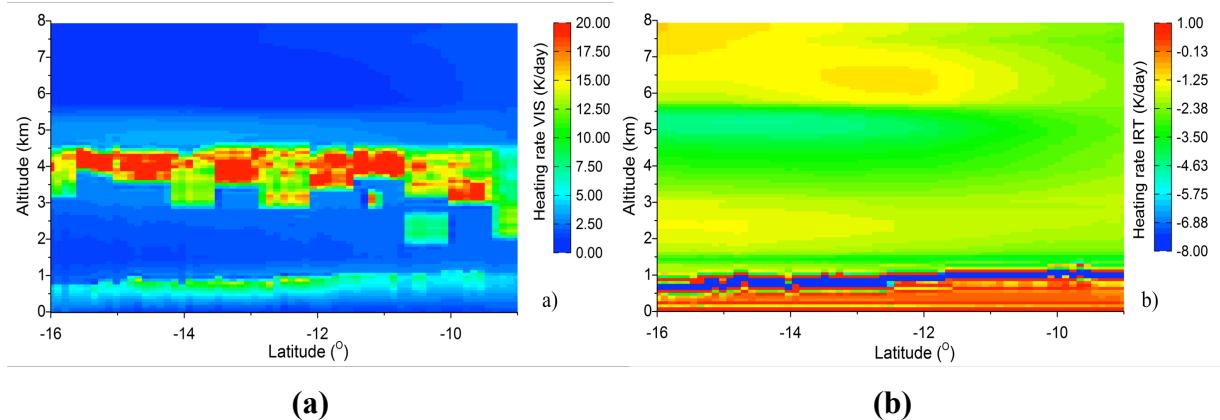
L'algorithme développé pour étudier les nuages avec MODIS repose sur la combinaison d'un canal sensible à l'épaisseur optique du nuage ( $0.858 \mu\text{m}$ ) et d'un autre sensible au rayon effectif des gouttelettes ( $2.13 \mu\text{m}$ ) (Nakajima et King, 1990). La présence de particules grossières (qui interagissent encore avec le rayonnement à  $2200 \text{ nm}$ ) au-dessus des nuages peut entraîner des biais sur l'estimation du rayon effectif des gouttelettes. Les biais peuvent atteindre 2 microns pour les cas de poussières minérales au-dessus des nuages (Haywood et al., 2004). Des biais équivalents existent lorsque des cirrus sont transportés au-dessus des nuages d'eau liquide. C'est évidemment un problème pour l'étude des interactions entre nuages et aérosols. Dans le cadre de 3MI, comme expliqué précédemment, il s'agira d'inverser simultanément les propriétés des aérosols et des nuages sous-jacents, en incluant également la microphysique des particules nuageuses dans l'inversion. On peut noter que le produit POLDER « poussières au-dessus des nuages » pourrait déjà être utilisé pour corriger ce biais sur le rayon effectif des gouttelettes restitué par MODIS. Enfin, un autre bénéfice de l'inversion simultanée des propriétés des aérosols et des nuages sera de prendre en compte les effets d'atténuation des aérosols sur les arcs surnuméraires et donc sur

l'inversion de la variance de la distribution en taille des gouttelettes. Ce paramètre peut également être intéressant pour l'étude de l'effet indirect des aérosols (Chandrakar et al., 2016). La diminution de la taille des gouttelettes, liée à l'augmentation de la concentration en aérosol, s'accompagnerait d'une diminution de la largeur de la distribution en taille des gouttelettes nuageuses (spectre de taille des gouttes plus étroit). Afin de confirmer ces résultats, il me semble intéressant, à l'avenir, d'inclure ce paramètre (variance effective de la distribution en taille des gouttelettes) dans les études portant sur les interactions aérosols-nuage.

L'étude des aérosols au-dessus des nuages à l'aide de capteur géostationnaire est un autre point important à développer. Les mesures de luminance spectrales fournies par exemple par SEVIRI (0.6, 0.8 et 1.6 microns) peuvent être utilisées pour inverser simultanément l'épaisseur optique des aérosols et des nuages et le rayon effectif des gouttelettes. La technique utilisée serait celle du « rapport de couleur », comme celle développée pour les instruments MODIS et OMI, pour détecter les aérosols absorbants au-dessus des nuages (c.f. tableau 3). La méthode ne permet pas d'estimer l'albédo de simple diffusion des aérosols ni de détecter les aérosols diffusants. L'avantage réside, évidemment, dans la capacité d'un radiomètre géostationnaire comme SEVIRI, à fournir des données toutes les 15 minutes permettant d'étudier l'évolution temporelle des propriétés des aérosols et des nuages sous-jacents. Les travaux menés au METOffice par F. Peers sur ces développements montrent des résultats prometteurs. Une synergie avec l'instrument 3MI est aussi envisageable. Les climatologies des propriétés des aérosols réalisées à l'aide de mesures de 3MI pourraient être utilisées pour contraindre le modèle d'aérosol utilisé pour l'analyse des mesures de l'instrument géostationnaire. De nombreux travaux ont montré des effets potentiels des aérosols absorbants localisés au-dessus des nuages sur la dynamique du nuage sous-jacent (Wilcox, 2010). Les données « aérosols-nuage » issues d'un capteur géostationnaire permettraient d'étudier l'évolution du cycle de vie des nuages en fonction de la charge en aérosol.

### 3.3. Synergie entre les mesures passives et actives pour des études d'impacts.

Les travaux menés durant la thèse de Lucia Deaconu ont permis de calculer les profils des taux d'échauffement pour les couches d'aérosols localisées au-dessus des nuages. Il a été montré que l'épaisseur optique restituée par l'algorithme opérationnel CALIOP est largement sous-estimée (c.f. figure 27-c). Les profils d'extinction fournis par CALIOP ont donc été ajustés par un facteur d'échelle afin de reproduire les épaisseurs optiques mesurées par POLDER. La base de données POLDER/CALIOP a été complétée par des données de réanalyses météorologiques (travaux menés en collaboration avec l'équipe IRN du LOA). Les profils de température et de vapeur d'eau issus des réanalyses ont également permis de calculer les taux d'échauffement (ou de refroidissement) dans l'infrarouge thermique (c.f. figure 34). La capacité à réaliser un bilan radiatif sur un spectre large pour ces panaches transportés au-dessus des nuages est une première étape pour la compréhension de leurs effets sur la dynamique atmosphérique (effets semi-directs).



**Figure 34.** Profils des taux d'échauffement instantané (K/jour) calculé **(a)** sur le spectre solaire,  $HR_{SW}$  et **(b)** dans l'infrarouge thermique,  $HR_{LW}$  pour un cas d'étude dans l'Atlantique sud est. Source : thèse de L. Deaconu.

Des limitations demeurent sur cette approche. Le calcul du taux d'échauffement est confiné entre les altitudes de la base et du sommet de la couche d'aérosols données par CALIOP. Comme expliqué dans la partie « résultat », l'altitude de la base de la couche est généralement surestimée par CALIOP pour les couches de particules de brûlis optiquement épaisse. La solution consiste à inclure les données CALIOP acquises à 1064 nm de façon quantitative dans l'analyse afin de mieux restituer l'épaisseur géométrique de ces couches. Cela permettra également de détecter les cas de contact se produisant au sommet du nuage de façon plus précise.

Une base des données rassemblant des observations passives et actives sur les aérosols et les nuages et des données de réanalyses météorologiques a été donc constituée pour les scènes de type « aérosols au-dessus des nuages ». Je compte utiliser et compléter à l'avenir cette base de données pour l'étude des interactions aérosols-rayonnement et des interactions aérosols, vapeur d'eau et nuages et également afin de mieux contraindre les modèles (c.f. section 3.6) et permettre une meilleure séparation des effets des aérosols et de la météorologie sur les propriétés des nuages. A l'avenir, je compte développer la synergie lidar-polarimètre plus avant afin d'obtenir de nouveaux paramètres utiles pour l'étude des interactions aérosols-nuage, tel que le nombre de gouttelettes. Ce paramètre peut être calculé à partir de la connaissance de la dépolarisation du nuage, mesurée par les lidars, et de la variance de la distribution en taille des gouttelettes, inversée à partir de mesures polarisées passives (Hu et al., 2007b). De futures missions spatiales vont inclure des lidars (EarthCARE, 2021) et pourront permettre de poursuivre cette démarche combinant observations passives et actives.

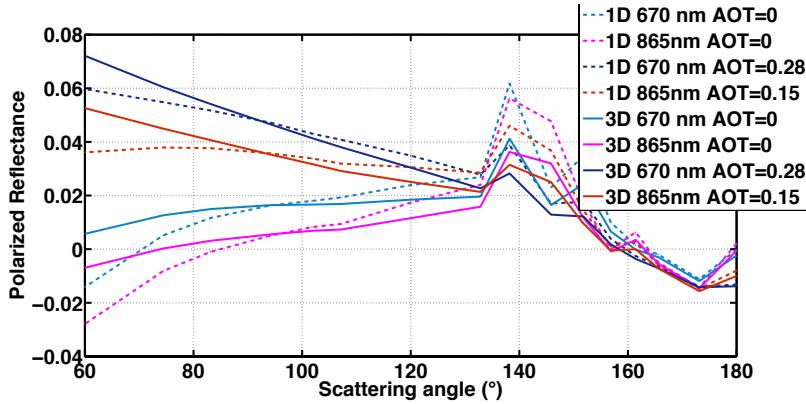
Les résultats de la thèse de L. Deaconu ont montré qu'il existe une sensibilité des mesures de POLDER et de CALIOP à la présence d'aérosols dans les nuages. Pour ces cas de contact ou de mélange (c.f. figure 29), l'épaisseur optique en aérosols au-dessus des nuages pourrait être inversée à l'aide de la méthode SODA (en supposant que cette méthode soit faiblement impactée par les aérosols présents dans le nuage) et l'épaisseur optique dans le nuage serait ensuite estimée à l'aide des mesures de luminances polarisées, a priori sensibles à la présence d'aérosols localisés dans la partie haute du nuage. Il y a un grand nombre d'hypothèses à prendre en compte pour réaliser une telle inversion. De façon raisonnable, il me semble tout d'abord important d'analyser l'impact des aérosols dans le nuage sur les inversions actuelles puisque la présence d'aérosols absorbants dans le nuage modifie les luminances totales mesurées depuis l'espace. Cet effet pourrait par exemple impacter les estimations de l'albédo de simple diffusion des aérosols reportées à l'aide de la

méthode développée pour POLDER. Les travaux de L. Deaconu montrent également que la présence de suie dans les gouttelettes modifie leur capacité à rétrodiffuser le rayonnement (c.f. Eq. 35). La présence de suie dans les gouttelettes réduit également l'amplitude des arcs-surnuméraires et des gloires. Si les gouttelettes nuageuses sont contaminées par de la suie dans la région de l'Atlantique sud, cela devrait laisser une signature sur les mesures des lidars et des radiomètres passifs. Encore une fois, les mesures aéroportées effectuées dans la région de l'Atlantique sud pourraient permettre de répondre à certaines de ces questions. Durant la campagne AEROCLO-sA, nous avons notamment effectué de mesures avec le lidar LNG en visant vers le bas, juste au dessus des nuages, afin d'étudier la rétrodiffusion des gouttelettes observées.

Le second objectif de la thèse de Lucia Deaconu a porté sur l'étude des effets des aérosols sur les propriétés des nuages, sur l'Océan Atlantique Sud. Comme expliqué plus haut, une synergie entre les restitutions CALIOP et POLDER colocalisées avec des paramètres météorologiques a été développée et utilisée. Les résultats montrent que de la vapeur d'eau est présente dans ces panaches de fumée et que celle-ci est corrélée avec la charge en aérosol. Ce résultat a été confirmée lors des vols effectués durant la campagne AEROCLO-sA, à l'aide des mesures des dropsondes et des mesures de PLASMA. Des calculs de transfert radiatif dans les domaines visible et infrarouge ont été réalisés. Nous avons trouvé que les aérosols et le contenu en vapeur d'eau pourraient impacter la convection des nuages. L'effet de la charge en aérosol sur les propriétés des nuages a été étudié en fonction de la météorologie pour une petite région située au large de l'Angola. Cette région a été sélectionnée afin de minimiser les cas de contact. En effet les aérosols ont plus de chance d'être entraînés dans les nuages lors de leur transport vers l'ouest, l'altitude des couches diminuant. Nos résultats montrent que sous de fortes charges d'aérosols, les nuages deviennent optiquement plus épais, avec une augmentation du contenu en eau liquide (intégré) de  $20 \text{ g.m}^{-2}$  et des altitudes plus basses du sommet du nuage ( $\sim 200 \text{ m}$ ), indiquant un potentiel effet semi-direct des aérosols au-dessus des nuages (Deaconu et al., 2018, en préparation). A l'avenir, je compte utiliser ce type d'approche de façon plus systématique pour étudier les impacts des aérosols au-dessus des nuages à l'aide de données active et passive, obtenues depuis un avion ou depuis l'espace.

### 3.4 Détection des aérosols dans les couvertures nuageuses fractionnées.

Le traitement des couches nuageuses fractionnées avec aérosols représente un challenge technique et un enjeu scientifique. Ces scènes mixtes, pour lesquelles des interactions entre aérosols et nuages sont possibles, ne sont pas actuellement traitées par l'algorithme opérationnel développé pour POLDER. La principale difficulté porte sur la modélisation du signal. Les effets radiatifs tridimensionnels des nuages ne sont pas négligeables pour ces scènes et impactent de façon significative les inversions réalisées à l'aide de code utilisant l'hypothèse plan-parallèle (code 1D). J'ai participé à une étude visant à analyser les biais introduits par ces effets tridimensionnels sur l'inversion des propriétés des aérosols au-dessus des nuages (Cornet et al., 2018). L'algorithme opérationnel a été testé avec des simulations 3D. La figure 35 montre les écarts entre simulation 1D et 3D pour des scènes fractionnées avec et sans aérosol. Selon la configuration géométrique des biais compris entre -30% et +60% sont obtenus sur l'épaisseur optique des aérosols inversée avec l'algorithme opérationnel pour ce type de scènes.



**Figure 35.** Modélisation de la luminance polarisée pour des scènes nuageuses fractionnées (à 70%) avec et sans aérosol. Angle zénithal solaire de 60°. Comparaison des simulations effectuées avec l'hypothèse plan-parallèle (1D) et un calcul de transfert radiatif 3D effectué avec le code 3DMCPOL. Les simulations ont été réalisées à une échelle spatiale fine (50 mètres) puis agrégées pour une échelle spatiale proche de celle de l'instrument POLDER (7 km × 7 km). Source : Cornet et al. (2018).

Le développement d'un démonstrateur couplant un code de transfert radiatif 3D avec une méthode d'estimation optimale est envisageable à l'heure actuelle, mais uniquement pour le traitement de cas d'étude. La principale limitation des codes 3D reste le temps de calcul. Si à terme, l'objectif est d'inverser simultanément les propriétés de l'atmosphère et des surfaces avec un code 3D (Martin et al., 2014), il semble intéressant d'effectuer une première analyse de ces scènes à l'aide d'une méthode approchée, donc plus rapide.

Je compte explorer plusieurs pistes. Une première approche consisterait à minimiser les biais observés dans l'arc primaire. Les différences observées dans l'arc entre calculs 1D et 3D (figure 35) sont liées au biais « plan-parallèle » qui provient de l'hétérogénéité sous-pixel des propriétés des nuages. Je propose de corriger ce biais en utilisant les propriétés des nuages (épaisseurs optiques) inversées à une résolution spatiale fine (par exemple par l'instrument MODIS) pour simuler les luminances polarisées mesurées par POLDER. Cette approche permettrait de corriger (probablement de façon approchée) les biais observés dans l'arc primaire. Ensuite, l'effet d'atténuation des aérosols dans l'arc pourrait être exploité pour estimer leur épaisseur optique (c.f. figure 20). Une seconde approche consisterait à dégrader la précision des simulations réalisées avec les codes de transfert radiatif 3D afin de réduire les temps de calcul. Comme rappelé précédemment, la polarisation est une quantité contrôlée au premier ordre par la diffusion simple. Une première simplification consisterait à limiter le nombre de diffusion dans le calcul. Cette démarche permettrait de prendre en compte les effets d'ombrage ou de surbrillance (Cornet et al., 2010). Il restera à définir une méthode d'inversion à utiliser pour ces scènes. Dans tous les cas, ma démarche consistera à évaluer la précision de ces approximations à l'aide d'un calcul exact, réalisé avec un code de transfert radiatif 3D.

En général, l'échauffement provoqué par des aérosols absorbants transportés dans des nuages favorise la diminution de l'humidité relative et du contenu en eau liquide réduisant ainsi le couvert nuageux. Cela a été observé dans le cas de cumulus (Ackerman et al., 2000) et de stratocumulus (Hill and Dobbie, 2008). Régionalement, cet effet semi-direct pourrait compenser près de 60% de l'effet direct des aérosols (Ramanathan et al, 2001). L'objectif de mes travaux pour ces scènes complexes serait (au minimum) d'extraire une information sur l'épaisseur optique en aérosol dans les scènes nuageuses fractionnées. Si cela est possible, je compte ensuite étudier l'évolution de la couverture nuageuse en fonction de la charge en

aérosol, du type de nuage, et de la position relative aérosol-nuage.

### 3.5. Préparation de la synergie 3MI-UVNS-IASI-NG et validation à l'aide de mesures aéroportées.

La campagne AEROCLO-sA a permis d'obtenir un jeu de données intéressant qui va permettre de tester les algorithmes applicables à 3MI pour l'étude des aérosols et les nuages (c.f. section 2.3). Nous envisageons d'adapter l'algorithme GRASP (en collaboration avec O. Dubovik) pour le traitement des données acquises par OSIRIS au-dessus des surfaces désertiques (en ciel clair). Par rapport à l'instrument POLDER, les canaux supplémentaires de 3MI et d'OSIRIS (1600 et 2200 nm) vont apporter des informations additionnelles sur le mode grossier des aérosols et permettront une meilleure restitution des propriétés des particules des deux modes. Ces mesures additionnelles seront également utiles pour mieux estimer les propriétés des particules nuageuses. Des descentes en boucle dans les panaches et des portions de vol réalisées à basse altitude (au ras de nuages et des déserts), vont permettre de comparer les inversions d'OSIRIS aux mesures de PLASMA. Nous comptons également comparer les mesures des flux réalisées lors des vols avec les flux calculés à partir des paramètres inversés par OSIRIS et le lidar LNG. Cette démarche permettra de valider la capacité de la synergie lidar-polarimètre à estimer les taux d'échauffement visible et infrarouge et le forçage direct des aérosols.

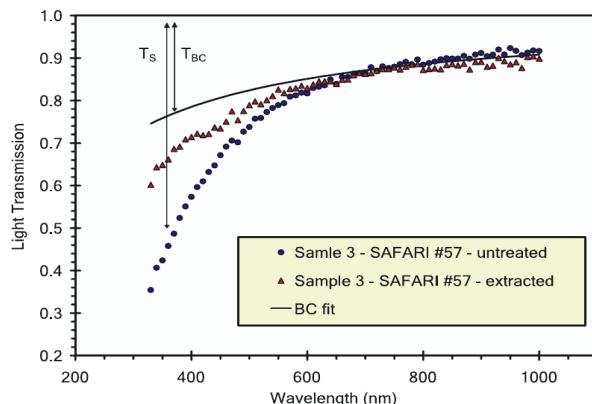
L'instrument spatial 3MI sera associé à d'autres capteurs tels que le spectromètre UVNS/S5<sup>20</sup> et l'interféromètre IASI-NG<sup>21</sup>. Ces instruments, principalement utilisés pour l'étude des gaz, fourniront des mesures dans l'UV et l'infrarouge thermique, exploitables également pour l'étude des aérosols. Les mesures dans l'infrarouge thermique sont principalement sensibles aux aérosols du mode grossier (ex : poussières minérales) et fournissent des informations sur la taille, l'altitude et la composition chimique de ces particules. Les aérosols issus des feux de biomasse et les poussières absorbent fortement dans l'UV. À terme, des algorithmes permettant de restituer l'ensemble des propriétés des aérosols, des gaz et des surfaces, seront très probablement développés. Dans un premier temps, il semble intéressant d'explorer l'apport de mesures additionnelles dans l'UV et l'infrarouge thermique pour l'inversion des propriétés des aérosols à partir d'un jeu de données original.

Certains composés organiques, appelés "carbone brun", émis principalement par les feux de biomasse, ont un pouvoir absorbant significatif. Comme le montre la figure 36, issue de Kirchstetter et al. (2004), le carbone brun absorbe plus efficacement le rayonnement ultraviolet que la suie. Je compte utiliser cet effet pour différencier la part d'absorption venant du carbone suie de celle du carbone brun dans les panaches de feux de biomasse. A l'avenir, je compte développer des algorithmes inversant simultanément des mesures acquises de l'UV à l'infrarouge. Le jeu de données acquis durant AEROCLO-sA pourra être utilisé dans un premier temps pour évaluer la méthode. Cette approche pourrait également être utile pour l'étude des poussières minérales, qui absorbent aussi le rayonnement ultraviolet (i.e. en fonction leur teneur en oxyde fer). Les mesures dans l'infrarouge thermique permettent déjà d'obtenir des estimations de l'épaisseur optique pour la composante grossière des poussières minérales et des cendres volcaniques (Pierangelo et al., 2004, Dubuisson et al., 2014, Cuesta et al., 2015). La combinaison des mesures de 3MI et de IASI-NG pourrait permettre de restituer d'autres paramètres comme la taille ou l'absorption

<sup>20</sup> UV-NS/S5 : Ultra-Violet Visible Near Infrared Short Wave Infrared spectrometer -Sentinel-5

<sup>21</sup> IASI-NG : Infrared Atmospheric Sounding Interferometer–New Generation

de ces particules dans l'infrarouge thermique. Une difficulté additionnelle porte sur l'estimation de l'indice de réfraction complexe des aérosols sur ce domaine spectral. A l'heure actuelle, il est nécessaire de faire des hypothèses sur ce paramètre ou d'utiliser des valeurs estimées en laboratoire. Une piste existe pour permettre une inversion cohérente de l'indice de réfraction des aérosols sur une large gamme spectrale. Des études de laboratoire ont proposé d'utiliser les relations de Kramers-Kronig pour contraindre l'inversion de l'indice de réfraction complexe des aérosols du visible à l'infrarouge thermique (Di Bagio et al., 2016, thèse de P. Hubert, 2017). Ces relations, dérivées des équations de Maxwell, relient les parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction des aérosols et leurs dépendances spectrales. Elles pourraient permettre d'ajouter une contrainte additionnelle sur l'inversion de ce paramètre depuis l'espace. Je compte explorer cette piste à partir de mes travaux ou avec l'aide de collègues du LOA. Un objectif majeur derrière ces travaux est l'estimation de la composition chimique de l'aérosol depuis l'espace, directement liée à la connaissance de l'indice de réfraction des aérosols et sa variation spectrale.



**Figure 36.** Propriétés d'absorption dans l'UV-visible du carbone suie pur (courbe noire) et d'un panache de feux de biomasse composé de carbone suie et carbone organique (courbes rouge et bleue).  $T_{BC}$  et  $T_s$  sont la différence de transmission du rayonnement entre de la suie pure et un panache réel de feux de biomasse contenant d'autres espèces absorbantes. Source : Kirchstetter et al. (2004).

La recherche aéroportée française devrait s'équiper dans les prochaines années d'un nouvel avion de type jet pour remplacer le FALCON-20. Des réflexions ont débuté concernant la mise en place des futurs instruments. Dans le cadre de l'étude des effets des aérosols sur les nuages, il me semble intéressant de disposer d'un avion de recherche permettant de faire à la fois des mesures de télédétection à haute altitude (10 km) et des mesures in situ dans les nuages. Ce type de démarche permettait de réaliser un exercice de validation unique et de répondre à certaines questions portant sur la capacité de radiomètres à détecter les aérosols dans les nuages et sur les interactions aérosols-nuage. Les mesures aéroportées in situ réalisées durant la campagne AEROCLO-sA ont permis la caractérisation de la distribution en taille des particules. Toutefois, il a été très difficile d'effectuer ces mesures dans les nuages, les radiomètres du LOA embarqués dans le F-20 n'étant pas prévus pour effectuer un séjour prolongé dans les nuages de type stratiforme. Une amélioration possible serait de rendre complètement étanche ces instruments pour les prochaines campagnes. Il me semble également intéressant de réfléchir à l'intégration d'instruments de mesure in situ permettant la caractérisation de l'absorption des aérosols ou

la mesure du contenu en suie dans les gouttes (exemple : instrument SP2<sup>22</sup>). Les instruments in situ de type néphélomètre permettent de mesurer la fonction de phase des gouttelettes et pourraient être utiles pour ces études. Après analyse, ces mesures permettent d'obtenir l'indice de réfraction complexe et la distribution en taille des particules. Cela pourrait permettre d'évaluer la présence éventuelle de suie dans les gouttes. Mon objectif n'est pas de développer des instruments in situ au LOA. Il me semble intéressant, par contre, de collaborer avec des spécialistes de cette mesure pour l'étude des interactions aérosols-nuage dans le cadre de futures campagnes (exemple : collaboration avec le laboratoire LaMP<sup>23</sup>). Sur le FALCON-20, la mesure des flux<sup>24</sup> est intégrée sur l'ensemble du spectre solaire. La communauté des chercheurs français, impliquée sur les mesures aéroportées, pourrait se doter d'un spectro-fluxmètre, tel que l'instrument SSFR, développé par la NASA. Cet instrument permet de mesurer les flux avec une résolution spectrale de l'ordre de la dizaine de nanomètres. La mesure spectrale des flux, combinée avec la mesure des épaisseurs optiques en aérosol (PLASMA) permettrait d'estimer l'albédo de simple diffusion des aérosols en fonction de la longueur d'onde (Bergström et al., 2003). L'avantage de cette méthode est quelle ne nécessite pas d'hypothèses sur la microphysique des aérosols. Elle nécessite toutefois d'effectuer des descentes en boucle pour échantillonner les flux au-dessus et en dessous de la couche d'aérosol. Les difficultés techniques et financières, associées au développement d'un tel instrument, doivent d'abord être évaluées. Une réflexion à ce sujet est en cours au LOA. Des modifications sont prévues sur le photomètre PLASMA (ingénieurs LOA) afin de permettre la mesure des luminances dans le plan solaire. L'objectif est de réaliser des inversions photométriques avec PLASMA proches de celles réalisées par les photomètres au sol. Je compte utiliser ces mesures dans de futures campagnes pour estimer plus précisément les propriétés microphysiques des aérosols depuis avion.

### 3.6 Couplage des observations et de la modélisation pour des études climatiques.

Je co-encadre actuellement la thèse d'Alexandre Siméon dont le sujet porte sur l'impact du carbone brun sur le climat et les nuages. Cette thèse combine l'observation et la modélisation. J'encadre principalement Alexandre sur les aspects portant sur la télédétection. Comme rappelé précédemment, la suie et le carbone brun présentent une différence de dépendance spectrale sur leur coefficient d'absorption. L'idée est donc d'exploiter cette spécificité en développant une approche originale couplant les données spatiales POLDER/PARASOL et OMI (A-Train) et un modèle régional de chimie-transport afin d'estimer la concentration des espèces suie et carbone brun, entrant dans la composition des particules de feux de biomasse. Le modèle utilisé dans cette étude est WRF-CHEM<sup>25</sup> (Sarangi et al., 2015). Une première simulation de référence a été réalisée pour la la région Atlantique du sud-est (juin-octobre 2008). Dans cette simulation, un inventaire mondial de feux de biomasse récemment développé et validé, a été utilisé en entrée du modèle (Turquety et al. 2014). Concernant l'absorption des aérosols, la figure 37 présente l'albédo de simple diffusion des aérosols (SSA) à différentes longueurs d'onde, estimé à partir de POLDER et simulé à l'aide de WRF-CHEM pour différents mélanges de carbone brun (BrOC) et de suie (BC).

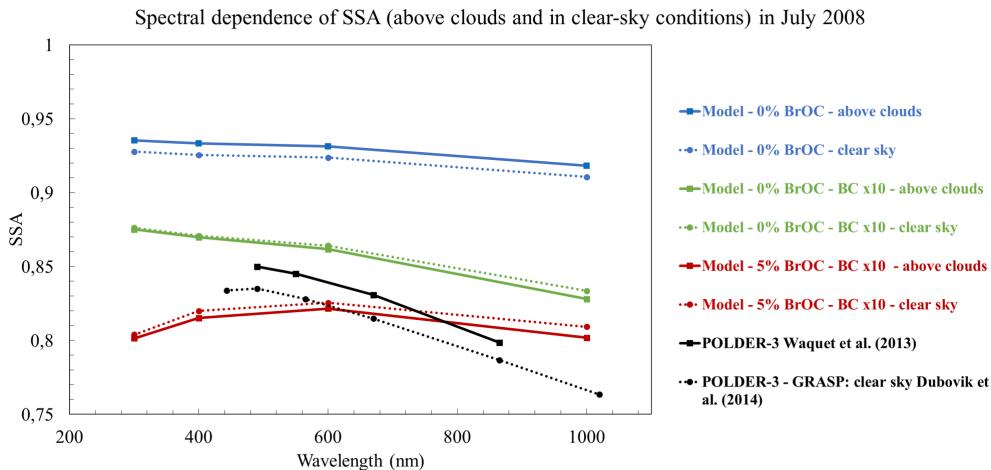
---

<sup>22</sup> Single Particle Soot Photometer

<sup>23</sup> Laboratoire de Météorologie Physique (LaMP)

<sup>24</sup> Le fluxmètre visible intégré sur le FALCON-20 est de type CMP22 Kipp et Zonen.

<sup>25</sup> WRF-CHEM : Weather Research and Forecasting (WRF) model coupled with Chemistry



**Figure 37.** Dépendance spectrale du SSA modélisée par WRF-CHEM pour différentes proportions de BC et de BrOC et restituée par le capteur POLDER. Moyenne mensuelle pour juillet 2008 sur la zone géographique de l'Atlantique sud-est. Inversions POLDER réalisées en ciel clair avec GRASP (en traits pointillés) et au-dessus des nuages (en traits pleins) avec la méthode Peers et al., (2015). Incertitudes sur le SSA dans les observations estimées à 0.05. Source : Thèse d'Alexandre Siméon).

La courbe noire est le résultat de l'instrument POLDER sur la région de l'Atlantique du Sud-Est. La courbe bleue est le résultat de la simulation de base dans laquelle le carbone suie est la seule espèce absorbante dans le modèle. On observe le comportement spectral d'un SSA qui décroît progressivement avec la longueur d'onde qui est typique des petites particules pour un certain contenu en suie. On note un écart assez important entre valeurs modélisées et observées. Un premier test a consisté à augmenter la fraction de suie dans le panache de feux modélisé (courbe verte), ce qui permet de diminuer un peu le biais du modèle. Un dernier test a consisté à introduire une fraction de carbone brun (courbe rouge). Nous voyons que l'ajout du carbone brun permet de diminuer encore un peu plus les écarts entre observations et simulations même si des biais importants sont encore présents. A terme, l'objectif est de développer une méthode permettant de déterminer la combinaison de BC et BrOC dans le modèle à partir de la mesure de l'absorption des aérosols de l'UV au proche-infrarouge.

Mes travaux récents m'ont conduit à collaborer avec des chercheurs extérieurs à mon laboratoire travaillant sur la modélisation. Je souhaite poursuivre et développer ces collaborations à l'avenir. Il me semble très intéressant de continuer les comparaisons entre les modèles AeroCom et les données POLDER (Peers et al., 2016). J'ai également proposé de comparer les données POLDER avec les sorties du modèle ALADIN-climat de météo France sur la région de l'Atlantique sud-est. Pour AEROCLO-sA, il est prévu de réaliser des simulations avec le modèle régional RegCM<sup>26</sup>, pour lequel une nouvelle paramétrisation a été développée pour étudier l'effet indirect des aérosols dans les stratocumulus. Cette méthode a déjà été comparée avec les données POLDER pour des aérosols de feux de biomasse observés au large de la Californie (Mallet et al., 2017). L'un des objectifs d'AEROCLO-sA est de co-localiser ces simulations avec les observations aéroportées. Des cas de contact, entre les couches d'aérosol et les nuages, ont notamment été observés. Le coefficient de rétrodiffusion mesuré par le lidar LNG, à 1064 nm, permet une bonne sensibilité à la base des couches d'aérosols. Il sera intéressant d'évaluer la capacité du

<sup>26</sup> RegCM : Regional Climate Model system RegCM

modèle RegCM à estimer (entre autres) les propriétés optiques et microphysiques des nuages restituées pour ces situations par OSIRIS.

Comme rappelé dans la partie « résultats », la région de l'Atlantique sud-est n'est pas la seule région concernée par le transport d'aérosols au-dessus des nuages. Il serait intéressant d'étudier d'autres régions avec ces méthodes, comme le pacifique Nord qui présente des nuages bas souvent survolés par des sulfates, des aérosols de feux de biomasses ou des poussières minérales. La région du pôle Nord est également intéressante pour l'étude des interactions aérosols-nuage. Les régions nuageuses avec présence de poussières minérales (souvent associées à de fortes charges) ont également été peu étudiées (exemple : sud-est de la chine au printemps). Une étude globale avec les modèles du climat permettrait d'identifier les régions présentant les plus fortes incertitudes. Ces études pourraient potentiellement permettre de mieux appréhender les difficultés des modèles à reproduire le transport des aérosols au-dessus des nuages (paramétrisation du transport, hauteur d'injection). J'espère à l'avenir pouvoir réaliser ce type d'étude. Une meilleure représentation des charges en aérosols transportées au-dessus des nuages, dans les modèles globaux, permettra très certainement, de réduire les incertitudes associées aux différents effets des aérosols sur le climat et les nuages.

## **4. Curriculum vitae.**

### **Activités d'enseignement et de recherche et principaux faits marquants (depuis 2009) :**

#### **Enseignement :**

- Cours, TD et travaux pratiques en optique, mécanique des fluides, électricité, électromagnétisme en 1<sup>ère</sup> et 2<sup>ème</sup> années de licence SESI (parcours aménagé), PEIP et SVTE.
- cours sur les méthodes de télédétection en 2<sup>ème</sup> année de master Lumière-Matière.
- cours sur le climat en 3<sup>ème</sup> année de licence de Physique.

**Projet pédagogique BQE :** conception et réalisation de deux séances numériques de travaux pratiques.

#### **Activités d'encadrement :**

- 2017 à aujourd’hui, post-doctorat d’Aurélien Chauvigné : *inversion des propriétés des aérosols et des nuages partir des mesures du polarimètre OSIRIS*, durant la campagne AEROCLO-sA en Namibie. (financement ANR puis CNES, encadrement à 100%).
- 2016 à aujourd’hui, thèse de doctorat de Alexandre Siméon : *Rôle du carbone brun sur les propriétés d’absorption et l’impact climatique des aérosols*. (financement labex CaPPA, encadrement à 33%).
- 2014-2017, thèse de doctorat de Lucia Deaconu soutenue en 2017 : *Etude des situations multi-couches et des interactions "aérosols-nuages"* thèse financée par le labex CaPPA<sup>27</sup>. (financement labex CaPPA, encadrement à 85%).
- 2012-2015, thèse de doctorat de Fanny Peers soutenue en 2015 : *Caractérisation des propriétés des aérosols au-dessus des nuages et de leur effet direct avec POLDER/PARASOL*. (financement Lille 1, encadrement à 85%).
- 2015, stage de master 2 de Christian Matar : *Analyse des mesures du radiomètre aéroportée OSIRIS au-dessus d’un mélange d'aérosols et de nuages*. (co-encadrement à 25%).
- 2014, stage de master 2 de Lucia Deaconu : *Etude des propriétés des aérosols au-dessus des nuages par télédétection active et passive*. (encadrement à 90%).
- 2012, stage de master 2 de Fanny Peers : *Caractérisation en laboratoire du polarimètre OSIRIS dédié à l’observation des aérosols et des nuages*. (encadrement à 90%).

**Préparation et réalisation d’une campagne de mesures aéroportée en Namibie** (projet ANR, campagne de terrain réalisée en août et septembre 2017). Je suis responsable de l’un des 4 « work-packages » du projet ANR intitulé AEROCLO-sA.

---

<sup>27</sup> CaPPA : Chemical and Physical Properties of the Atmosphere

**Projets financés (autres que ANR) :** Depuis 2009, mes travaux ont été soutenus par trois financements du Programme National de Télédétection Spatiale (PNTS). J'ai été également associé à 4 projets soutenus par le programme TOSCA (Terre Solide, Océan, Surfaces Continentales et Atmosphère) du CNES.

**Distinctions : *JQSRT Peter C. Waterman Award : Scattering and Remote Sensing (2013)*.**

- J'ai reçu ce prix lors du congrès ELS XIV (ELECTROMAGNETIC AND LIGHT SCATTERING XIV CONFERENCE) en Juin 2013 à Lille. C'est une distinction décernée par le journal JQSRT (Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer) et par le comité scientifique de l'ELS. C'est une distinction internationale attribuée à un jeune chercheur ayant mené une activité de recherche innovante. Ce prix m'a principalement été accordé pour mes travaux novateurs sur la détection des aérosols dans les scènes nuageuses.
- Distinction au mérite de l'université. J'ai reçu une prime d'encadrement doctoral et de recherche (PEDR) en 2015.
- Distinction « AGU Highlight special » attribuée à mon article intitulé : *Polarimetric aerosol over land* publié dans la revue *Journal of Atmospheric Research* en 2009.

**Présentations invitées :**

- 2013, American Geoscience Union (AGU) à San Francisco ; la session spéciale « aérosol au-dessus des nuages » : *Retrieval of aerosol properties above liquid clouds from POLDER/PARASOL measurements*.
- 2018, colloque de bilan/prospective du PNTS : pour un exposé sur les méthodes inverses : *Méthodes inverses pour la détermination des propriétés des aérosols depuis l'espace*.

**Parcours post-doctoral (2006-2009) :**

|                                   |  |
|-----------------------------------|--|
| Oct.<br>2007<br>à<br>Août<br>2009 | <b>Post-doctorat financé par le CNES et la région Nord-Pas de Calais :</b><br><i>Préparation des futures missions européennes d'observation de la terre, basées sur l'utilisation de mesures polarisée, multi-angulaire et multi-spectrale.</i><br>(Responsable scientifique: D. Tanré, LOA)   |
| Mai<br>2006<br>à<br>Oct.<br>2007  | <b>Post-doctorat financé par la Columbia University (New York) :</b><br><i>Développement d'une méthode de caractérisation des propriétés des aérosols au-dessus des terres, basée sur l'information multi-spectrale et polarisée, en préparation de la mission GLORY APS (polarimètre spatial de la NASA). Application aux mesures de la version aéroportée de l'instrument GLORY APS (RSP), obtenues durant la campagne MILAGRO.</i><br>(Responsable scientifique: B. Cairns, Goddard Institute for Space Studies NASA GISS). |
| Mars<br>2006                      | <b>Campagne de mesures MILAGRO :</b> Participation active à une campagne de mesures de la NASA effectuée au Mexique (étude de la pollution sur la ville de Mexico et des émissions locales de particules de brûlis).   |

|               |  |
|---------------|--|
| Oct.<br>2005- | <b>Attaché Temporaire d'Enseignement et de Recherche en physique.</b>              |
| Fev.<br>2006  | Université Lille 1.<br>80 heures d'enseignement (TD-TP en optique et électricité). |

**Formation (1997-2005) :**

|                                    |   |
|------------------------------------|---|
| Oct.<br>2002<br>à<br>Déc.<br>2005  | <b>Thèse de doctorat</b> de l'Université de Lille 1 (soutenue le 14 décembre 2005) : <i>Apport de l'information multi-spectrale (0.49-2.2 µm) et polarisée pour la caractérisation des aérosols.</i> (Directeur et co-directeur de thèse : P. Goloub / J.-L. Deuzé) |
| Sept.<br>2001<br>à<br>Juin<br>2002 | <b>D.E.A de physique, spécialité Laser, molécule et rayonnement atmosphérique (LAMORA)</b><br>Sujet de stage : <i>Etude préliminaire des mesures effectuées avec le polarimètre moyen-infrarouge MICROPOL.</i> (Encadrant : P. Goloub)                              |
| 2001                               | <b>Maîtrise de sciences physiques option physique</b> , USTL (Université de Lille)  |
| 2000                               | <b>Licence de sciences physiques</b> , USTL.  |
| 1999                               | <b>D.E.U.G Sciences de la matière</b> , option chimie USTL  |

## 5. Enseignement et encadrement scientifique

Depuis mon recrutement en tant que maître de conférences en 2009, je me suis plus particulièrement investi sur les enseignements de spécialité liés à mes activités de recherche, et aussi sur certains aspects pédagogiques de l'enseignement de la physique en première année de licence.

J'ai notamment participé à un projet intitulé *Des compléments numériques en soutien à la pratique expérimentale en physique*. En effet, les travaux pratiques sont encore présentés aux étudiants uniquement sous forme de fiches alors qu'il est possible de les rendre plus modernes et attractifs en utilisant des ressources numériques de formats variés tels que des animations, des simulations, des documents interactifs et des vidéos. Les compléments numériques pour les travaux pratiques que nous avons développés comprennent de nombreuses illustrations, une présentation vidéo du matériel, des exemples de manipulations ainsi que des ressources interactives où l'étudiant peut simuler des mesures comme s'il était en séance de travaux pratiques. Plusieurs séances ont été réalisées en optique, électricité et en mécanique et nous les utilisons pour l'ensemble des étudiants de première année (environ 1000 étudiants).

J'ai conçu et réalisé les deux séances d'électricité. Les enseignements d'électricité ont quasiment disparu des programmes de physique du lycée. J'ai constaté que les élèves ingénieurs de deuxième année ont du mal à utiliser convenablement un oscilloscope ; ces compléments leur permettent de s'entraîner à leur rythme et selon leurs besoins, en dehors des salles de manipulation et des horaires consacrés.

La première séance porte sur la notion de schéma équivalent en électricité et sur le théorème de Thévenin. La seconde porte sur l'utilisation de l'oscilloscope qui intervient dans de nombreux travaux pratiques en physique. Les retours sont positifs. En effet, j'ai constaté que les étudiants sont plus réactifs durant les séances de travaux pratiques, les circuits électriques comportent moins d'erreurs, et les séances se déroulent dans le temps imparti. Les étudiants interrogés se montrent très enthousiastes vis-à-vis de ces compléments.



Ces séances peuvent être consultées en ligne :

« Schéma équivalent »

[http://ressources.unisciel.fr/tp\\_virtuels/collection\\_complete/co/schema\\_equiv...\\_2.html](http://ressources.unisciel.fr/tp_virtuels/collection_complete/co/schema_equiv..._2.html)

« Régime alternatif (mesures) »

[http://ressources.unisciel.fr/tp\\_virtuels/collection\\_complete/co/regimes\\_alternatifs\\_mesures\\_SESI\\_web\\_standart/co/module\\_regimes\\_alternatifs\\_mesures\\_SESI\\_2.html](http://ressources.unisciel.fr/tp_virtuels/collection_complete/co/regimes_alternatifs_mesures_SESI_web_standart/co/module_regimes_alternatifs_mesures_SESI_2.html)

En master, je m'investis dans l'enseignement de ma spécialité : la télédétection spatiale. J'enseigne 10 heures dans cette thématique dans le master « lumière-matière ». Je propose un cours directement lié à mes activités de recherche et celles de mon équipe au LOA. Je réalise également des cours en licence (3<sup>ème</sup> année de physique, 15 heures) sur le climat et l'océan.

### **Résumé de mes enseignements (environ 192 heures/an)**

| <b>Enseignement</b>                                   | <b>Type</b>    | <b>Filière</b>   |
|---|----------------|--|
| Optique   | Cours-TD-TP    | Licence 1(physique appliquée aux sciences naturelles)  |
| Mécanique des fluides                                 | Cours-TD-TP    | Licence 1 (physique appliquée aux sciences naturelles) |
| Electrocinétique                                      | Cours-TD-TP    | Licence aménagée SESI (première année)                 |
| Electromagnétisme                                     | TD-TP          | Licence 2 <sup>ème</sup> année filière PEIP            |
| Télédétection spatiale                                | Cours (option) | Master lumière-matière                                 |
| Climat et océan<br>(Physique – terre – environnement) | Cours (option) | Licence 3 <sup>ème</sup> année en physique             |

### **Encadrement doctoral et scientifique :**

#### **Co-encadrant de 3 stages de master depuis 2009 :**

Fév. -juin. **Encadrement d'un stage de master 2 de physique.**

2012 Spécialité Lumière – matière, Université Lille 1.

Étudiante : Fanny Peers

Sujet : Caractérisation en laboratoire du polarimètre OSIRIS dédié à l'observation des aérosols et des nuages.

Co-encadrant : P. Goloub

Encadrement estimé à : 90%

Mars – **Encadrement d'un stage de master 2**  
juin. 2014 Étudiante : Lucia Deaconu  
Sujet : Etude des propriétés des aérosols au-dessus des nuages par télédétection active et passive.  
Co-encadrement : P. Goloub (coll. avec Damien Josset, NASA Langley)

Encadrement estimé à : 90%

**Co-encadrement d'un stage de master 2 de physique**  
Étudiant : Christian Matar  
Mars – Sujet : Analyse des mesures du radiomètre aéroportée OSIRIS au dessus d'un  
juin. 2015 mélange d'aérosols et de nuages  
Encadrante principale : C. Cornet (Maître de conférences, LOA)

Encadrement estimé à : 25%

### **Co-encadrant sur 3 thèses depuis 2009 :**

**Sujet 1 (soutenue) :** Caractérisation des propriétés des aérosols au-dessus des nuages et de leur effet direct avec POLDER/PARASOL.

Étudiante : Fanny Peers

Période : Oct. 2012-Déc. 2015

Encadrement estimé à : 85%

Spécialité Lumière – matière, Université de Lille 1

Co-encadrant : P. Goloub (Professeur, directeur de la thèse, LOA)

Publications associées à la thèse : 2 en premier auteur acceptées, 2 en deuxième auteur acceptées.

**Sujet 2 (soutenue) :** Etude des situations multi-couches et des interactions "aérosols-nuages" thèse financée par le labex CaPPA<sup>28</sup>.

Étudiante : Lucia Deaconu

Période : Oct. 2014-Oct. 2017

Encadrement estimé à : 85%

Spécialité Lumière – matière, Université de Lille 1

---

<sup>28</sup> CaPPA : Chemical and Physical Properties of the Atmosphere

Co-encadrants : Philippe Goloub (Professeur, directeur de la thèse, LOA) et Nicolas Ferlay (Maître de conférences, LOA)

Publication : 1 papier publié en premier auteur, 1 papier publié (co-auteur), 1 papier en premier auteur en cours de rédaction.

**Sujet 3 (thèse en cours) :** Rôle du carbone brun sur les propriétés d'absorption et l'impact climatique des aérosols, thèse financée par le labex CaPPA.

Étudiant : Alexandre Siméon

Période : Oct. 2016-Oct. 2019

Encadrement estimé à : 33%

Co-encadrants : Isabelle Chiappello (CR2 CNRS directrice de la thèse, LOA) et Jean-Christophe Péré (Maître de conférences, LOA)

## 6. Projets financés et autres activités liées à la recherche.

- 3 projets financés par le PNTS (Programme National de Télédétection Spatiale)

-Détection des aérosols dans les scènes nuageuses : propriétés et impacts climatiques, projet n° PNTS-2013-10, **Fabien Waquet**. (15000 euros)

-Restitution de propriétés optiques d'aérosols et de nuages dans des scènes nuageuses hétérogènes et fractionnées à partir de mesures POLDER/PARASOL, projet n° PNTS-2014-02 ; Céline Cornet (co-proposant : **F. Waquet**) (18000 euros)

-Préparation de la mission spatiale 3MI à partir de données de télédétection aéroportées et spatiales acquises durant la campagne AEROCLO-SA pour des situations « multi-couche ». **Waquet Fabien**, PNTS-2016-14. (25000 euros)

- 1 projet financé par l'ANR (Agence Nationale de la Recherche)

Un projet financé par l'ANR (715 000 euros)

Titre : AEROCLO-SA: AErosol RAdiation and CLOUDs in Southern Africa. P. Formenti (LISA), B. D'Anna (IRCELYON), C. Flamant (LATMOS), **F. Waquet** (LOA), M. Mallet (LA). Lien :

[http://www.agence-nationale-recherche.fr/projet-anr/?tx\\_lwmsuivibilan\\_pi2%5BCODE%5D=ANR-15-CE01-0014](http://www.agence-nationale-recherche.fr/projet-anr/?tx_lwmsuivibilan_pi2%5BCODE%5D=ANR-15-CE01-0014)

- Co-proposant sur 4 projets soumis au programme TOSCA (Terre Solide, Océan, Surfaces Continentales et Atmosphère) du CNES.

-Préparation à l'exploitation scientifique de 3MI et synergies avec l'EPS-SG pour l'observation des aérosols, des nuages et de la vapeur d'eau. Porteur. Scientifique proposant : J. Riedi (LOA). Co-proposants : O. Dubovik, L. Labonnote et **F. Waquet**. (2019)

-Characterising the aerosol properties and radiative impact in southern africa using satellite, ground-based and airborne measurements: The aerosol, radiation and clouds (aeroclo-sa) field campaign. (Scientifique proposant : P. Formenti (LISA). Co-proposants : C. Flamant, **F. Waquet** et J. Cuesta. (2019)

-Préparation à l'exploitation scientifique de la mission 3MI pour l'étude des aérosols et de leurs impacts, en synergie avec d'autres moyens d'observations spatiaux et au sol. Scientifique proposant : Philippe Goloub, co-proposants : O. Dubovik, **F. Waquet**, H. Herbin et Y. Derimian. (2018)

-Mission PARASOL et préparation de 3MI. Scientifique proposant : O. Dubovik. Co-proposants : D. Tanré et **F. Waquet**. (2017)

**Activités de revue scientifique :**

Pour les journaux Applied Optics, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer (JQSRT) and Atmospheric Chemistry and Physics (ACP) and Journal of Geophysical Research (JGR).

**Professeur invité :**

J'ai bénéficié d'un support budgétaire de l'université de Lille 1 pour permettre à un collègue, Jacek Chowdhary, enseignant à la Columbia University (New York) et, effectuant ces travaux de recherche à NASA (GISS), d'effectuer un séjour scientifique au LOA (en juin 2014).

## 7. Liste de publications

22 publications dans des journaux de rang A depuis 2005 incluant 9 publications en premier auteur. Les articles avec une astérisque sont donnés en annexe

- Mallet M., Solmon F., Roblou L., Peers F., Turquety S. **Waquet F.**, H. Jethva and O. Torres. Simulation of Optical Properties and Direct and Indirect Radiative Effects of Smoke Aerosols Over Marine Stratocumulus Clouds During Summer 2008 in California With the Regional Climate Model RegCM, *Journal of Geophysical Research*, 2017, <https://doi.org/10.1002/2017JD026905>.
- Céline Cornet, Laurent C.-Labonnote, **Fabien Waquet**, Frédéric Szczap, Lucia Deaconu, Frédéric Parol, Claudine Vanbause, François Thieuleux, Jérôme Riédi. (2018) Cloud heterogeneity on cloud and aerosol above cloud properties retrieved from simulated total and polarized reflectances. *Atmospheric Measurement Techniques* 11:6, 3627-3643.
- \*Deaconu, L. T., **Waquet, F.**, Josset, D., Ferlay, N., Peers, F., Thieuleux, F., Ducos, F., Pascal, N., Tanré, D., and Goloub, P.: Consistency of aerosols above clouds characterisation from A-Train active and passive measurements, *Atmos. Meas. Tech. Discuss.*, <https://doi.org/10.5194/amt-2017-42>, 2017.
- Waquet, F.**, J.-C. Pére, F. Peers, P. Goloub, F. Ducos, F. Thieuleux, and D. Tanré (2016), Global detection of absorbing aerosols over the ocean in the red and near-infrared spectral region, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, doi:10.1002/2016JD025163.
- \*Peers, F., Bellouin, N., **Waquet, F.**, Ducos, F., Goloub, P., Mollard, J., et al. (2016). Comparison of aerosol optical properties above clouds between POLDER and AeroCom models over the South East Atlantic Ocean during the fire season. *Geophysical Research Letters*, 43, 3991-4000. doi:10.1002/2016GL068222.
- Mallet, M., Dulac, F., Formenti, P., Nabat, P., Sciare, J., Roberts, G., Pelon, J., Ancellet, G., Tanré, D., Parol, F., Denjean, C., Brogniez, G., di Sarra, A., Alados-Arboledas, L., Arndt, J., Auriol, F., Blarel, L., Bourrianne, T., Chazette, P., Chevaillier, S., Claeys, M., D'Anna, B., Derimian, Y., Desboeufs, K., Di Iorio, T., Doussin, J.-F., Durand, P., Féron, A., Freney, E., Gaimoz, C., Goloub, P., Gómez-Amo, J. L., Granados-Muñoz, M. J., Grand, N., Hamonou, E., Jankowiak, I., Jeannot, M., Léon, J.-F., Maillé, M., Maillet, S., Meloni, D., Menut, L., Momboisse, G., Nicolas, J., Podvin, T., Pont, V., Rea, G., Renard, J.-B., Roblou, L., Schepanski, K., Schwarzenboeck, A., Sellegrí, K., Sicard, M., Solmon, F., Somot, S., Torres, B., Totems, J., Triquet, S., Verdier, N., Verwaerde, C., **Waquet, F.**, Wenger, J., and Zapf, P.: Overview of the Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment/Aerosol Direct Radiative Forcing on the Mediterranean Climate (ChArMEx/ADRIMED) summer 2013 campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 455-504, doi:10.5194/acp-16-455-2016, 2016.
- Chami, M., B. Lafrance, B. Fougnie, J. Chowdhary, T. Harmel, and **F. Waquet**, "OSOAA: a vector radiative transfer model of coupled atmosphere-ocean system for a rough sea surface application to the estimates of the directional variations of the water leaving reflectance to better process multi-angular satellite sensors data over the ocean," *Opt. Express* 23, 27829-27852 (2015).
- Peers F., **F. Waquet**, C. Cornet, P. Dubuisson , F. Ducos, P. Goloub , F. Szczap, D. Tanré and F. Thieuleux, 2014: Absorption of aerosols above clouds from POLDER/PARASOL measurements and estimation of their Direct Radiative Effect, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 14, 25533–25579.
- Waquet, F.**, Peers, F., Goloub, P., Ducos, F., Thieuleux, F., Derimian, Y., Riedi, J., and Tanré, D., 2014: Retrieval of the Eyjafjallajökull volcanic aerosol optical and

- microphysical properties from POLDER/PARASOL measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 1755-1768, 2014.
- Péré J. C., Bessagnet, B., Mallet, M., **Waquet, F.**, Chiapello, I., Minvielle, F., Pont, V., and Menut, L., 2014 : Direct radiative effect of the Russian wildfires and their impact on air temperature and atmospheric dynamics during August 2010, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 1999-2013, 2014, doi:10.5194/acp-14-1999-2014, 2014.
- Waquet, F.**, Cornet, C., Deuzé, J.-L., Dubovik, O., Ducos, F., Goloub, P., Herman, M., Lapyonok, T., Labonne, L. C., Riedi, J., Tanré, D., Thieuleux, F., and Vanbause, C. : Retrieval of aerosol microphysical and optical properties above liquid clouds from POLDER/PARASOL polarization measurements, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 991-1016, doi:10.5194/amt-6-991-2013, 2013a.
- Waquet, F.**, F. Peers, F. Ducos, P. Goloub, S. Platnick, J. Riedi, D. Tanré, and F. Thieuleux: Global analysis of aerosol properties above clouds, *Geophys. Res. Lett.*, 40, 5809–5814, doi:10.1002/2013GL057482, 2013b.
- Jetva, H., O. Torres, **F. Waquet**, D. Chand and Y. Hu: How do A-train Sensors Inter-Compare in the Retrieval of Above-Cloud Aerosol Optical Depth? A Case Study based Assessment, *Geophys. Res. Lett.*, DOI: 10.1002/2013GL058405, 2013.
- Chowdhary, J., B. Cairns, **F. Waquet**, K. Knobelispiesse, M. Ottaviani, J. Redemann, L. Travis, and M. Mishchenko, 2011: Sensitivity of multiangle, multispectral polarimetric remote sensing over open oceans to water-leaving radiance: Analyses of RSP data acquired during the MILAGRO campaign. *Remote Sens. Environ.*, 118, 284-308, doi:10.1016/j.rse.2011.11.003.
- Tanré, D., Bréon, F. M., Deuzé, J. L., Dubovik, O., Ducos, F., François, P., Goloub, P., Herman, M., Lifermann, A., and **Waquet, F.**: Remote sensing of aerosols by using polarized, directional and spectral measurements within the A-Train: the PARASOL mission, *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 1383-1395, doi:10.5194/amt-4-1383-2011, 2011.
- \***Waquet, F.**, B. Cairns, K. Knobelispiesse, J. Chowdhary, L.D. Travis, B. Schmid, and M.I. Mishchenko (2009a). Polarimetric remote sensing of aerosols over land, *J. Geophys. Res.*, doi:10.1029/2008JD010619. « AGU highlight journal »
- Waquet, F.**, J. -F. Léon, B. Cairns, P. Goloub, J. -L. Deuzé, and F. Auriol, "Analysis of the spectral and angular response of the vegetated surface polarization for the purpose of aerosol remote sensing over land (2009b), *Applied Optics*, 48, 1228-1236 doi:10.1364/AO.48.001228.
- \***Waquet, F.**, J. Riedi, L. C-Labonne, P. Goloub, B. Cairns, J.-L. Deuzé, D. Tanré Aerosol remote sensing over clouds using the A-Train observations (2009c). *Journal of Atmospheric Sciences*, doi: 10.1175/2009JAS3026.1.
- Auriol F., J.-F. Léon, J.-Y. Balois, C. Verwaerde, P. François, J. Riedi, F. Parol, **F. Waquet**, D. Tanré, and P. Goloub, “Multidirectional visible and shortwave infrared polarimeter for atmospheric aerosol and cloud observation : OSIRIS (Observing System Including PolaRisation in the Solar Infrared Spectrum) », vol. 7149, p. 71491D, 2008.
- Waquet F.**, P . Goloub, J-L. Deuzé, J.F.Léon, F. Auriol, C. Verwaerde, J-Y. Balois and P. François (2007). Aerosol Retrieval Over Land using a multiband polarimeter and comparison with path radiance method, *J Geophys. Res.*, 112, D111214, doi: 10.1029/2006JD008029.
- \***Waquet F.**, J-F. Léon, P. Goloub, J. Pelon, D. Tanré (2005), J-L Deuzé, Maritime and Dust Aerosol retrieval from polarized and multi-spectral active and passive sensors, *J. Geophys. Res.*, 110 <D10S10>, doi:10.1029/2000JD004839.

### **Chapitre de livre:**

Cairns B., **F. Waquet**, K. Knobelispiesse, J. Chowdhary and J-L. Deuzé (2009). Polarimetric Remote Sensing of Aerosols over Land Surfaces, in Satellite Aerosol Remote Sensing Over Land, by Kokhanovsky, Alexander A. and De Leeuw, Gerrit, Jointly published with Praxis Publishing, UK, pages: 400. (<http://www.springer.com/earth+sciences/book/978-3-540-69396-3>).

### **Publication en cours de révision :**

**Waquet F.** and Maurice Herman. The truncation problem, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, JQSRT\_2018\_359, 2018.

### **Présentation(s) invitée(s) :**

**Waquet F.**, Peers F., Ducos F., Goloub P., Riedi J., Tanré D., and F. Thieuleux, Retrieval of aerosol properties above liquid clouds from POLDER/PARASOL measurements, AGU Fall, San Francisco, USA, Décembre 2013. **(oral)**

**Waquet F.** Méthodes inverses pour la détermination des propriétés des aérosols depuis l'espace, colloque de bilan et prospective du PNTS, Grenoble, février 2018. **(oral)**

### **Actes de congrès avec comité de lecture (sélection) :**

**Waquet. F.**, J. Riedi, L. Labonnotte, F. Thieuleux, F. Ducos, P. Goloub, D. Tanré, Vol 89, Remote sensing of aerosols above cloud using polarization measurements from POLDER/PARASOL: Comparison with LIDAR caliop SUPPLEMENT NO 1 (2011): ELECTROMAGNETIC AND LIGHT SCATTERING XIII CONFERENCE. Taormina, Italy, 26-30 September, 2011. **(proceeding and poster)**.

**Waquet. F.**, Riedi J., Labonnotte L., Thieuleux. F., Ducos F., Goloub P. and Tanré D. Aerosols remote sensing over clouds using the A-train observations. International Symposium on the A-Train Satellite Constellation 2010. New Orleans, USA, October 25-28, 2010. **(poster)**

**Waquet F.**, Peers F., Ducos F., Goloub P., Riedi J., Tanré D., and F. Thieuleux, Retrieval of aerosol properties above liquid clouds from POLDER/PARASOL polarization measurements, ELECTROMAGNETIC AND LIGHT SCATTERING XIV CONFERENCE, Lille, Juin 2013. **(oral)**

**Waquet, F.**, Cairns, B.; Chowdhary J.; Knobelispiesse, K.; Mishchenko, M I.; Travis, L. D. : Application of an optimal estimation method to the retrieval of aerosol properties using multi-spectral, multi-angle polarimetric measurements from the Research Scanning Polarimeter (RSP). American Geophysical Union: December 15, 2006. **(oral)**

**Waquet, F.**, P. Goloub, J.-F. Léon, J.-L. Deuzé, F. Auriol, C. Verwaerde, J.-Y. Balois, and D. Tanré, 2005: Remote sensing of aerosol properties over land using total and polarized measurements from the visible to the middle infrared. *European Geosciences Assembly*, Session AS1.08 Clouds, Aerosols and Radiation, Vienna, Austria, 24-29 April. **(oral)**

**Conférences, séminaires et ateliers de travail (sélection):**

**Waquet F.** Aerosol remote sensing over land using polarized measurements over the solar reflective spectral region (0.41-2.25  $\mu\text{m}$ ). GLORY Meeting, NASA GISS, New York, USA, November 2008 **(oral)**.

**Waquet. F.** Aerosols remote sensing over clouds using the A-train observations. GCOM PI workshop for atmospheric Sciences. Japan Aerospace Exploration Agency (JAXA). Tokyo, Japan, January 2010. **(poster)**

**Waquet. F.** Aerosols above cloud deck. Lidar CALIPSO WORKSHOP Lille from 22 to 24 mars 2011. **(oral)**

**Waquet et al.**, Retrieval of aerosol microphysical and optical properties above liquid clouds from POLDER/PARASOL polarization measurements. Aerosols & Clouds Workshop. Observations and modeling of aerosol and clouds properties for climate studies. Paris, France, September 12-14, 2011.

**Waquet F.**, P. Goloub., J.-F. Léon, J.-L. Deuzé, F. Auriol, M. Herman, J.-Y. Balois, C. Verwaerde, D. Tanré, 2004: Développement d'un polarimètre multispectral, application à la détection des aérosols. *Atelier expérimentation et instrumentation*, Paris, France, 23-24 mars. **(oral)**.

**Waquet F.**, first observation and results with OSIRIS, PLASMA and MICROPOL for the AEROCLO-sA field campaign, 2018 first AEROCLO-sA meeting, Creteil, France.

## 8. Bibliographie.

- Ackerman, A. S., Toon, O. B., Stevens, D. E., Heymsfield, A. J., Ramanathan, V. and Welton, E. J.: Reduction of tropical cloudiness by soot, *Science* (80-.), 288(5468), 1042–1047, doi:10.1126/science.288.5468.1042, 2000.
- Albrecht, B. A.: Aerosols, Cloud Microphysics, and Fractional Cloudiness, *Science* (80.), 245(4923), 1227–1230, doi:10.1126/science.245.4923.1227, 1989.
- Auriol F., J.-F. Léon, J.-Y. Balois, C. Verwaerde, P. François, J. Riedi, F. Parol, F. Waquet, D. Tanré, and P. Goloub, “Multidirectional visible and shortwave infrared polarimeter for atmospheric aerosol and cloud observation : OSIRIS (Observing System Including PolaRisation in the Solar Infrared Spectrum) », vol. 7149, p. 71491D, 2008.
- Balkanski, Y., Schulz, M., Claquin, T. and Guibert, S.: Reevaluation of Mineral aerosol radiative forcings suggests a better agreement with satellite and AERONET data, *Atmos. Chem. Phys.*, 7(1), 81–95, doi:10.5194/acp-7-81-2007, 2007.
- Bergstrom, R. W., P. Pilewskie, B. Schmid, P. B. Russell, Estimates of the spectral aerosol single scattering albedo and aerosol radiative effects during SAFARI 2000, *J. Geophys. Res.*, 108(D13), 8474, doi:10.1029/2002JD002435, 2003.
- Bond, T. C. et R. W. Bergstrom (2006). “Light Absorption by Carbonaceous Particles : An Investigative Review”. In : *Aerosol Science and Technology* 40.1, p. 27–67.
- Boucher, O., Randall, D., Artaxo, P., Bretherton, C., Feingold, G., Forster, P., Kerminen, V.-M. V.-M., Kondo, Y., Liao, H., Lohmann, U., Rasch, P., Satheesh, S. K., Sherwood, S., Stevens, B., Zhang, X. Y. and Zhan, X. Y.: Clouds and Aerosols, *Clim. Chang.* 2013 *Phys. Sci. Basis. Contrib. Work. Gr. I to Fifth Assess. Rep. Intergov. Panel Clim. Chang.*, 571–657, doi:10.1017/CBO9781107415324.016, 2013.
- Bréon F.M., D. Tanré, P. Leconte & M. Herman. Polarized Reflectance of Bare Soils and Vegetation : Measurements and Models. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.* 33, 487-499 (1995).
- Bréon, F.-M. and Goloub, P.: Cloud droplet effective radius from spaceborne polarization measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 25(11), 1879–1882, doi:10.1029/98GL01221, 1998.
- Bréon, F. M., and N. Henriot (2006), Spaceborne observations of ocean glint reflectance and modeling of wave slope distributions, *J. Geophys. Res.*, 111, C06005, doi:10.1029/2005JC003343.
- Cairns B., L.D. Travis and E.E. Russell, The Research Scanning Polarimeter: Calibration and Ground-based measurements, *Proc. SPIE*, 3754, 186-197, 1999.
- Cairns B., F. Waquet, K. Knobelispiesse, J. Chowdhary and J-L. Deuzé (2009). Polarimetric Remote Sensing of Aerosols over Land Surfaces, in *Satellite Aerosol Remote Sensing Over Land*, by Kokhanovsky, Alexander A. and De Leeuw, Gerrit, Jointly published with Praxis Publishing, UK, pages: 400. (<http://www.springer.com/earth+sciences/book/978-3-540-69396-3>).
- Chami, M., B. Lafrance, B. Fougnie, J. Chowdhary, T. Harmel, and F. Waquet, "OSOAA: a vector radiative transfer model of coupled atmosphere-ocean system for a rough sea surface application to the estimates of the directional variations of the water leaving reflectance to better process multi-angular satellite sensors data over the ocean," *Opt. Express* 23, 27829-27852 (2015).
- Chand, D., Wood, R., Anderson, T. L., Satheesh, S. K., and Charlson, R. J.: Satellite-derived direct radiative effect of aerosols dependent on cloud cover, *Nat. Geosci.*, 2, 181–

- 184, <https://doi.org/10.1038/ngeo437>, 2009.
- Chandrakar K.K., Cantrell W., Chang K., Ciochetto D., Niedermeier D., Ovchinnikov M., Shaw R., Yang F. Aerosol indirect effect from turbulence-induced broadening of cloud-droplet size distributions. *PNAS*, vol. 113, no. 50, P. 14243–14248. DOI: 10.1073/pnas.1612686113, 2016.
- Chandrasekhar, S.: Radiative transfer. By S. Chandrasekhar. London (Oxford University Press) 1950. 8vo. Pp. 393, 35 figures. 35s, Q. J. R. Meteorol. Soc., 76(330), 498–498, doi:10.1002/qj.49707633016, 1950.
- Chowdhary, J., B. Cairns, F. Waquet, K. Knobelispesie, M. Ottaviani, J. Redemann, L. Travis, and M. Mishchenko, 2011: Sensitivity of multiangle, multispectral polarimetric remote sensing over open oceans to water-leaving radiance: Analyses of RSP data acquired during the MILAGRO campaign. *Remote Sens. Environ.*, 118, 284–308, doi:10.1016/j.rse.2011.11.003.
- Chowdhary, J., B. Cairns, M.I. Mishchenko, P.V. Hobbs, G.F. Cota, J. Redemann, K. Rutledge, B.N. Holben, and E. Russell, 2005: Retrieval of aerosol scattering and absorption properties from photopolarimetric observations over the ocean during the CLAMS experiment. *J. Atmos. Sci.*, 62, 1093–1117, doi:10.1175/JAS3389.1.
- Cornet, C., C.-Labonnote, L., and Szczap, F.: Three-dimensional polarized Monte Carlo atmospheric radiative transfer model (3DMCPOL): 3-D effects on polarized visible reflectances of a cirrus cloud, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 111, 174–186, <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2009.06.013>, 2010.
- Cornet C., Laurent C.-Labonnote, Fabien Waquet, Frédéric Szczap, Lucia Deaconu, Frédéric Parol, Claudine Vanbause, François Thieuleux, Jérôme Riédi. (2018) Cloud heterogeneity on cloud and aerosol above cloud properties retrieved from simulated total and polarized reflectances. *Atmospheric Measurement Techniques* 11:6, 3627–3643.
- Costantino, L. and Bréon, F. M.: Aerosol indirect effect on warm clouds over South-East Atlantic, from co-located MODIS and CALIPSO observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 13(1), 69–88, doi:10.5194/acp-13-69-2013, 2013.
- Cox, C. et W. Munk (1954). “Measurement of the roughness of the sea surface from photographs of the sun’s glitter”. In : *JOSA* 44.11, p. 838–850.
- Cuesta, J., M. Eremenko, C. Flamant, G. Dufour, B. Laurent, G. Bergametti, M. Höpfner, J. Orphal, and D. Zhou (2015), Three-dimensional distributionof a major desert dust outbreak over East Asia in March 2008 derived from IASI satellite observations, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120, 7099–7127, doi:10.1002/2014JD022406.
- Deaconu, L. T., Waquet, F., Josset, D., Ferlay, N., Peers, F., Thieuleux, F., Ducos, F., Pascal, N., Tanré, D., Pelon, J. and Goloub, P.: Consistency of aerosols above clouds characterization from A-Train active and passive measurements, *Atmos. Meas. Tech.*, 10, 3499–3523, doi:10.5194/amt-10-3499-2017, 2017.
- Deaconu L. Etude des situations multi-couches « aérosols » et des interactions « aérosols-nuages ». *Thèse, Université de Lille 1*. (2017).
- De Graaf, M., Tilstra, L. G., Wang, P. and Stammes, P.: Retrieval of the aerosol direct radiative effect over clouds from spaceborne spectrometry, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 117(7), doi:10.1029/2011JD017160, 2012.
- De Graaf, M., N. Bellouin, L. G. Tilstra, J. Haywood et P. Stammes (2014). “Aerosol direct radiative effect of smoke over clouds over the southeast Atlantic Ocean from 2006 to 2009”. In : *Geophysical Research Letters* 41.21, p. 7723–7730.
- Deschamps et al. The POLDER mission : Instrument characteristics and scientific objectives. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.* 32, 598–615 (1994).
- Deuzé et al. Remote sensing of aerosols over land surfaces from POLDER-ADEOS-1

- polarized measurements. *J. Geophys. Res.* 106, 4913-4926 (2001).
- Di Biagio, C., Boucher, H., Caquineau, S., Chevaillier, S., Cuesta, J., and Formenti, P.: Variability of the infrared complex refractive index of African mineral dust: experimental estimation and implications for radiative transfer and satellite remote sensing, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 11093-11116, <https://doi.org/10.5194/acp-14-11093-2014>, 2014.
- Diner D. J., A. Davis, B. Hancock, G. Gutt, R. A. Chipman, and B. Cairns, "Dual-photoelastic-modulator-based polarimetric imaging concept for aerosol remote sensing," *Appl. Opt.*, 46, 8428-844, 2007.
- Di Noia, Antonio & Hasekamp, Otto & Harten, Gerard & Rietjens, Jeroen & Smit, Martijn & Snik, F & Henzing, Bas & de Boer, J & Keller, Christoph & Volten, H. (2015). Use of neural networks in ground-based aerosol retrievals from multi-angle spectropolarimetric observations. *Atmospheric Measurement Techniques*. 8. 281-299. 10.5194/amt-8-281-2015.
- Dubovik, O., A. Sinyuk, T. Lapyonok, B. N. Holben, M. Mishchenko, P. Yang, T. F. Eck, H. Volten, O. Muñoz, B. Veihelmann, W. J. van der Zande, J.-F. Leon, M. Sorokin et I. Slutsker (2006). "Application of spheroid models to account for aerosol particle nonsphericity in remote sensing of desert dust". In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 111.D11. D11208.
- Dubovik, O., Herman, M., Holdak, A., Lapyonok, T., Tanré, D., Deuzé, J. L., Ducos, F., Sinyuk, A. and Lopatin, A.: Statistically optimized inversion algorithm for enhanced retrieval of aerosol properties from spectral multi-angle polarimetric satellite observations, *Atmos. Meas. Tech.*, 4(5), 975–1018, doi:10.5194/amt-4-975-2011, 2011.
- Dubuisson, P., Herbin, H., Minvielle, F., Compiègne, M., Thieuleux, F., Parol, F., and Pelon, J.: Remote sensing of volcanic ash plumes from thermal infrared: a case study analysis from SEVIRI, MODIS and IASI instruments, *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 359-371, <https://doi.org/10.5194/amt-7-359-2014>, 2014.
- Forster, P., V. Ramaswamy, P. Artaxo, T. Berntsen, R. Betts, D.W. Fahey, J. Haywood, J. Lean, D.C. Lowe, G. Myhre, J. Nganga, R. Prinn, G. Raga, M. Schulz and R. Van Dorland, 2007: Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing. In: *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M.Tignor and H.L. Miller (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Fougnie, B., G. Bracco, B. Lafrance, C. Ruffel, O. Hagolle et C. Tiné (2007). "PARASOL in-flight calibration and performance". In : *Applied optics* 46.22, p. 5435–5451.
- Formenti P. Le projet Aerosols, radiation and clouds in Southern Africa (Aeroclo-sA), La Météorologie, n°99, Novembre 2017.
- Fraser, R. S., Satellite measurement of mass of Sahara dust in the atmosphere, *Appl. Opt.*, 15, 2471–2479, 1976.
- Goloub, P., Herman, M., Chepfer, H., Riedi, J., Brogniez, G., Couvert, P. and Séze, G.: Cloud thermodynamical phase classification from the POLDER spaceborne instrument, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 105(D11), 14747–14759, doi:10.1029/1999JD901183, 2000.
- Goloub, P., J.-L. Deuze, M. Herman et Y. Fouquart (1994). "Analysis of the POLDER polarization measurements performed over cloud covers". In : *Geoscience and Remote Sensing, IEEE Transactions on* 32.1, p. 78–88.
- Hansen, J., Sato, M. and Ruedy, R.: Radiative forcing and climate response, *J. Geophys.*

- Res. Atmos., 102(D6), 6831–6864, doi:10.1029/96JD03436, 1997.
- Hasekamp O. P. and J. Landgraf, Retrieval of aerosol properties over land surfaces: capabilities of multiple-viewing-angle intensity and polarization measurements, *Appl. Opt.*, 46, 3332–3344, doi:10.1364/AO.46.003332, 2007.
- Haywood, J. M., Osborne, S. R. and Abel, S. J.: The effect of overlying absorbing aerosol layers on remote sensing retrievals of cloud effective radius and cloud optical depth, Q. J. R. Meteorol. Soc., 130(598), 779–800, doi:10.1256/qj.03.100, 2004.
- Herman, M., Deuzé, J. L., Marchand, A., Roger, B. and Lallart, P.: Aerosol remote sensing from POLDER/ADEOS over the ocean: Improved retrieval using a nonspherical particle model, J. Geophys. Res. D Atmos., 110(10), 1–11, doi:10.1029/2004JD004798, 2005.
- Hill, A. A., Dobbie, S. and Yin, Y.: The impact of aerosols on non-precipitating marine stratocumulus. I: Model description and prediction of the indirect effect, Q. J. R. Meteorol. Soc., 134(634 A), 1143–1154, doi:10.1002/qj.278, 2008.
- Hu, Y., Liu, Z., Winker, D., Vaughan, M., Noel, V., Bissonnette, L., Roy, G. and McGill, M.: Simple relation between lidar multiple scattering and depolarization for water clouds, Opt. Lett., 31(12), 1809, doi:10.1364/OL.31.001809, 2006.
- Hu, Y., Vaughan, M., Liu, Z., Powell, K. and Rodier, S.: Retrieving Optical Depths and Lidar Ratios for Transparent Layers Above Opaque Water Clouds From CALIPSO Lidar Measurements, IEEE Geosci. Remote Sens. Lett., 4(4), 523–526, doi:10.1109/LGRS.2007.901085, 2007a.
- Hu, Y., Vaughan, M., Liu, Z., Lin, B., Yang, P., Flittner, D., Hunt, B., Kuehn, R., Huang, J., Wu, D., Rodier, S., Powell, K., Trepte, C. and Winker, D.: The depolarization - attenuated backscatter relation: CALIPSO lidar measurements vs. theory, Opt. Express, 15(9), 5327–5332, doi:10.1364/OE.15.005327, 2007b.
- Hubert P. Spectres d'extinction de particules minérales et restitution des indices complexes de réfraction dans l'infrarouge et l'UV-visible. *Thèse, Université de Lille*. (2016).
- Jethva, H., Torres, O., Waquet, F., Chand, D., and Hu, Y.: How do A-train sensors intercompare in the retrieval of above-cloud aerosol optical depth? A case study-based assessment, Geophys. Res. Lett., 41, 186–192, <https://doi.org/10.1002/2013GL058405>, 2014.
- Jethva, H., Torres, O., Remer, L. A., and Bhartia, P. K.: A color ratio method for simultaneous retrieval of aerosol and cloud optical thickness of above-cloud absorbing aerosols from passive sensors: Application to MODIS measurements, IEEE T. Geosci. Remote, 51, 3862–3870, <https://doi.org/10.1109/TGRS.2012.2230008>, 2013.
- IPCC (2014). Climate Change 2014 : Synthesis Report. Contribution of Working Groups I, II and III to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Sous la dir. de Team, C. W., R. K. Pachauri et L. A. Meyer. Geneva, Switzerland : IPCC.
- Kaufman, Y. J., Tanré, D. and Boucher, O.: A satellite view of aerosols in the climate system., Nature, 419(6903), 215–23, doi:10.1038/nature01091, 2002.
- Kirchstetter T. W., Novakov T. and Hobbs P. V. , 2004. Evidence that the spectral dependence of light absorption by aerosols is affected by organic carbon, J. Geophys. Res., 109, D21208, doi:10.1029/2004JD004999.
- Knobelpiesse, K., Cairns, B., Redemann, J., Bergstrom, R. W., and Stohl, A.: Simultaneous retrieval of aerosol and cloud properties during the MILAGRO field campaign, Atmos. Chem. Phys., 11, 6245–6263, doi:10.5194/acp-11-6245-2011, 2011.
- Koch, D. and Del Genio, A. D.: Black carbon semi-direct effects on cloud cover: Review and synthesis, Atmos. Chem. Phys., 10(16), 7685–7696, doi:10.5194/acp-10-7685-

2010, 2010.

- Lacagnina, C., O. P. Hasekamp, H. Bian, G. Curci, G. Myhre, T. van Noije, M. Schulz, R. B. Skeie, T. Takemura, and K. Zhang (2015), Aerosol single-scattering albedo over the global oceans: Comparing PARASOL retrievals with AERONET, OMI, and AeroCom models estimates, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120, doi:10.1002/2015JD023501.
- Laherrere, Jean-Marc & Poutier, Laurent & Bret-Dibat, Thierry & Hagolle, Olivier & Baque, C & Moyer, P & Verges, E. (1997). POLDER on-ground stray light analysis, calibration, and correction. Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering. 3221. 10.1117/12.298073.
- Legrand M., M. Desbois & K. Vovor. Satellite detection of Saharan dust: Optimized imaging during nighttime. *J. Clim.* 1, 256-264 (1988).
- Lenoble, J., D. Tanré, P. Y. Deschamps et M. Herman (1982). "A simple method to compute the change in earth-atmosphere radiative balance due to a stratospheric aerosol layer". In : Journal of the Atmospheric Sciences 39.11, p. 2565–2576.
- Lebsack M. D., T. S. L'Ecuyer and G. L. Stephens, Information content of near-infrared spaceborne multiangular polarization measurements for aerosol retrieval, *J. Geophys. Res.*, 112, doi:10.1029/2007JD008535, 2007.
- Litvinov, P., O. Hasekamp, and B. Cairns, 2011: Models for surface reflection of radiance and polarized radiance: Comparison with airborne multi-angle photopolarimetric measurements and implications for modeling top-of-atmosphere measurements. *Remote Sens. Environ.*, 115, 781-792, doi:10.1016/j.rse.2010.11.005.
- Hasekamp O. P. and J. Landgraf, Retrieval of aerosol properties over land surfaces: capabilities of multiple-viewing-angle intensity and polarization measurements, *Appl. Opt.*, 46, 3332-3344, doi:10.1364/AO.46.003332, 2007.
- Hasekamp O. P. Litvinov and A. Butz (2011), Aerosol properties over the ocean from parasol multi-angle photopolarimetric measurements, *J. Geophys. Res.*, 116, D14204, doi:10.1029/2010JD015469.
- Hsu, N. C., J. R. Herman, and S.-C. Chen (2003), Radiative impacts from biomass burning in the presence of clouds during boreal spring in southeast Asia, *Geophysical Research Letters*, 30(5), 28–31, doi:10.1029/2002GL016485.
- Maignan, Fabienne et Bréon, Francois-Marie & Fédièle, Emilie & Bouvier, Marc. (2009). Polarized reflectances of natural surfaces: Spaceborne measurements and analytical modeling. *Remote Sensing of Environment.* 113. 2642-2650. 10.1016/j.rse.2009.07.022.
- Mallet M., Solmon F., Roblou L., Peers F., Turquety S. Waquet F., H. Jethva and O. Torres. Simulation of Optical Properties and Direct and Indirect Radiative Effects of Smoke Aerosols Over Marine Stratocumulus Clouds During Summer 2008 in California With the Regional Climate Model RegCM, *Journal of Geophysical Research*, 2017, <https://doi.org/10.1002/2017JD026905>.
- Martin, W., B. Cairns, and G. Bal, 2014: Adjoint methods for adjusting three-dimensional atmosphere and surface properties to fit multi-angle/multi-pixel polarimetric measurements. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 144, 68-85, doi:10.1016/j.jqsrt.2014.03.030.
- McCormick, R. A. et J. H. Ludwig (1967). "Climate modification by atmospheric aerosols". In : *Science* 156.3780, p. 1358–1359.
- Menzel, W. P., R. A. Frey et B. A. Baum (2010). "Cloudtop properties and cloud phase algorithm theoretical basis document, version 8". In : available online at <http://modis-atmos.gsfc.nasa.gov/docs/CTPATBDoct10.pdf> (last access : April 2013).
- Meyer, K., Platnick, S. and Zhang, Z.: Simultaneously inferring above-cloud absorbing

- aerosol optical thickness and underlying liquid phase cloud optical and microphysical properties using MODIS, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120(11), 5524–5547, doi:10.1002/2015JD023128, 2015.
- Mishchenko, M.I. & L.D. Travis, Satellite retrieval of aerosol properties over the ocean using polarization as well as intensity of reflected sunlight. *J. Geophys. Res.* **102**, 16989–17013 (1997).
- Myhre, G., Shindell, D., Bréon, F.-M., Collins, W., Fuglestvedt, J., Huang, J., Koch, D., Lamarque, J.-F., Lee, D., Mendoza, B., Nakajima, T., Robock, A., Stephens, G., Takemura, T. and Zhang, H.: Anthropogenic and Natural Radiative Forcing, Clim. Chang. 2013 Phys. Sci. Basis. Contrib. Work. Gr. I to Fifth Assess. Rep. Intergov. Panel Clim. Chang., 659–740, doi:10.1017/CBO9781107415324.018, 2013a.
- Nadal, F. & F.M. Bréon. Parameterization of surface polarized reflectances derived from POLDER spaceborne measurements. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.* **37**, 1709–1719 (1999).
- Nakajima, T. et M. D. King (1990). “Determination of the optical thickness and effective particle radius of clouds from reflected solar radiation measurements. Part I : Theory”. In : *Journal of the atmospheric sciences* 47.15, p. 1878–1893.aywood
- O’Connor, E. J., Illingworth, A. J., and Hogan, R. J.: A Technique for Autocalibration of Cloud Lidar, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 21, 777–786, [https://doi.org/10.1175/1520-0426\(2004\)021<0777:ATFAOC>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0426(2004)021<0777:ATFAOC>2.0.CO;2), 2004.
- Peers F., Waquet F., Cornet C., Dubuisson P., Ducos F., Goloub P., Szczap F., Tanré D. and Thieuleux F., 2015. Absorption of aerosols above clouds from POLDER/PARASOL measurements and estimation of their direct radiative effect, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 4179–4196.
- Peers, F. Caractérisation des propriétés des aérosols au-dessus des nuages et de leur effet direct avec POLDER/PARASOL. *Thèse, Université de Lille 1* (2015).
- Peers, F., Bellouin, N., Waquet, F., Ducos, F., Goloub, P., Mollard, J., Myhre, G., Skeie, R. B., Takemura, T., Tanré, D., Thieuleux, F., and Zhang, K.: Comparison of aerosol optical properties above clouds between POLDER and AeroCom models over the South East Atlantic Ocean during the fire season, *Geophys. Res. Lett.*, 43, 3991–4000, <https://doi.org/10.1002/2016GL068222>, 2016.
- Pierangelo, C., A. Ch’edin, S. Heilliette, N. Jacquinot-Husson, and R. Armante, Dust altitude and infrared optical depth from AIRS, *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 1813–1822, 2004.
- Pinnick, R. G., Jennings, S. G., Chýlek, P., Ham, C., and Grandy, W. T.: Backscatter and extinction in water clouds, *J. Geophys. Res.*, 88, 6787, <https://doi.org/10.1029/JC088iC11p06787>, 1983.
- Platt, C. M. R.: Remote Sounding of High Clouds: I. Calculation of Visible and Infrared Optical Properties from Lidar and Radiometer Measurements, *J. Appl. Meteorol.*, 18, 1130–1143, [https://doi.org/10.1175/1520-0450\(1979\)018<1130:RSOHCI>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0450(1979)018<1130:RSOHCI>2.0.CO;2), 1979.
- Pokhrel R. P., Beamesderfer E. R., Wagner N. L., Langridge J. M., Lack D. A., Jayaraman T., Stone E. A., Stockwell C. E., Yokelson R. J. and Murphy S. M., 2017. Relative importance of black carbon, brown carbon, and absorption enhancement from clear coatings in biomass burning emissions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17, 5063–5078.
- Potter, J F. The Delta Function Approximation in Radiative Transfer Theory. *J. Atmos. Sci.*, 1970, 27, 943–949.
- Powell, K., Vaughan, M., Winker, D., Lee, K. P., Pitts, M., Trepte, C., Detweiler, P., Hunt, W., Lambeth, J., and Lucker, P.: Cloud–Aerosol LIDAR Infrared Pathfinder Satellite

- Observations (CALIPSO), Data Manag. Syst. Data, Prod. Cat. Doc. No. PC-SCI-503, Release, 3, 2010.
- Quentzel, H. & P. Koepe. Tropospheric aerosol optical depth inverted from upwelling radiances, in *Aerosols and Their Climatic Impact*, edited by H.E. Gerber and A. Deepak, pp. 227-240, A. Deepak, Hampton, Va. (1984).
- Ramanathan, V. et al. The Indian Ocean Experiment: An Integrated Assessment of the Climate Forcing and Effects of the Great Indo-Asian haze. *J. Geophys. Res.* **106**, 28371-28393 (2001).
- Rao, C.R.N., E.P. McClain & L.L. Strowe. Remote-Sensing of aerosols over the oceans using AVHRR data theory, practice and application. *Int. J. Rem. Sens.* **10**, 743-749 (1989).
- Riedi, J., B. Marchant, S. Platnick, B. A. Baum, F. Thieuleux, C. Oudard, F. Parol, J.-M. Nicolas et P. Dubuisson (2010). "Cloud thermodynamic phase inferred from merged POLDER and MODIS data". In : Atmospheric Chemistry and Physics 10.23, p. 11851–11865.
- Rosenfeld, D.: Suppression of Rain and Snow by Urban and Industrial Air Pollution, *Science* (80-.), 287(5459), 1793–1796, doi:10.1126/science.287.5459.1793, 2000.
- Sakaeda, N., Wood, R. and Rasch, P. J.: Direct and semidirect aerosol effects of southern African biomass burning aerosol, *J. Geophys. Res. Atmos.*, **116**(12), D12205, doi:10.1029/2010JD015540, 2011.
- Sarangi, C., Tripathi S. N, Tripathi S. and Barth M. C, 2015. Aerosol-cloud associations over Gangetic Basin during a typical monsoon depression event using WRF-Chem simulation. *Journal of Geophysical Research*, **120**, 10974-10995.
- Snik, F., Karalidi, T., and Keller, C. U. (2009) Spectral modulation for full linear polarimetry, *Appl. Opt.* **48**, 1337-1346.
- Stier, P., N. A. J. Schutgens, N. Bellouin, H. Bian, O. Boucher, M. Chin, S. Ghan, N. Huneeus, S. Kinne, G. Lin, X. Ma, G. Myhre, J. E. Penner, C. A. Randles, B. Samset, M. Schulz, T. Takemura, F. Yu, H. Yu et C. Zhou (2013). "Host model uncertainties in aerosol radiative forcing estimates : results from the AeroCom Prescribed intercomparison study". In : Atmospheric Chemistry and Physics 13.6, p. 3245–3270.
- Tanré, D, Y.J. Kaufman, M. Herman & S. Mattoo. Remote sensing of aerosol over oceans from EOS-MODIS. *J. Geophys. Res.* **102**, 16971-16988 (1997).
- Tanré, D., Bréon, F. M., Deuzé, J. L., Dubovik, O., Ducos, F., François, P., Goloub, P., Herman, M., Lefèvre, A., and Waquet, F.: Remote sensing of aerosols by using polarized, directional and spectral measurements within the A-Train: the PARASOL mission, *Atmos. Meas. Tech.*, **4**, 1383-1395, doi:10.5194/amt-4-1383-2011, 2011.
- Torres, O., Jethva, H. and Bhartia, P. K.: Retrieval of Aerosol Optical Depth above Clouds from OMI Observations: Sensitivity Analysis and Case Studies, *J. Atmos. Sci.*, **69**(3), 1037–1053, doi:10.1175/JAS-D-11-0130.1, 2012.
- Turquety, S., Menut, L., Bessagnet, B., Anav, A., Viovy, N., Maignan, F., and Wooster, M., 2014. APIFLAME v1.0: high-resolution fire emission model and application to the Euro-Mediterranean region, *Geoscientific Model Development*, **7**, 587-612.
- Twomey, S.: Pollution and the planetary albedo, *Atmos. Environ.*, **8**(12), 1251–1256, doi:10.1016/0004-6981(74)90004-3, 1974.
- Vanbauce, C., B. Cadet et R. T. Marchand (2003). "Comparison of POLDER apparent and corrected oxygen pressure to ARM/MMCR cloud boundary pressures". In : *Geophysical research letters* **30**.5.
- Vanderbilt V.C. et al. Specular, diffuse, and polarized light scattered by two wheat canopies. *Applied Optics* **24**, 2408-2418 (1985).

- Volten, H., O. Muñoz, E. Rol, J.F de Haan, W. Vassen, J.W. Hovenier, Scattering matrices of mineral aerosol particles at 41.6 nm and 632.8 nm, *J. Geophys. Res.*, 106, 17,375-17,401, 2001.
- Waquet F., J-F. Léon, P. Goloub, J. Pelon, D. Tanré (2005), J-L Deuzé, Maritime and Dust Aerosol retrieval from polarized and multi-spectral active and passive sensors, *J. Geophys. Res.*, 110 <D10S10>, doi:10.1029/2000JD004839.
- Waquet F. Apport de l'information multispectrale (0. 49-2. 2  $\mu$ m) et polarisée pour la caractérisation des aérosols. *Thèse, Université de Lille 1.* (2005).
- Waquet F., P . Goloub, J-L. Deuzé, J.F.Léon, F. Auriol, C. Verwaerde, J-Y. Balois and P. François (2007). Aerosol Retrieval Over Land using a multiband polarimeter and comparison with path radiance method, *J Geophys. Res.*, 112, D111214, doi: 10.1029/2006JD008029.
- Waquet, F., B. Cairns, K. Knobelispiesse, J. Chowdhary, L.D. Travis, B. Schmid, and M.I. Mishchenko (2009a). Polarimetric remote sensing of aerosols over land, *J. Geophys. Res.*, doi:10.1029/2008JD010619. « AGU highlight journal ».
- Waquet, F., J. -F. Léon, B. Cairns, P. Goloub, J. -L. Deuzé, and F. Auriol, "Analysis of the spectral and angular response of the vegetated surface polarization for the purpose of aerosol remote sensing over land (2009b), *Applied Optics*, 48, 1228-1236 doi:10.1364/AO.48.001228.
- Waquet, F., J. Riedi, L. C-Labonnote, P. Goloub, B. Cairns,J.-L. Deuzé,D. Tanré Aerosol remote sensing over clouds using the A-Train observations (2009c). *Journal of Atmospheric Sciences*, doi: 10.1175/2009JAS3026.1.
- Waquet, F., Cornet, C., Deuzé, J.-L., Dubovik, O., Ducos, F., Goloub, P., Herman, M.,Lapyonok, T., Labonnote, L. C., Riedi, J., Tanré, D., Thieuleux, F., and Vanbause, C. : Retrieval of aerosol microphysical and optical properties above liquid clouds from POLDER/PARASOL polarization measurements, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 991-1016, doi:10.5194/amt-6-991-2013, 2013a.
- Waquet, F., F. Peers, F. Ducos, P. Goloub, S. Platnick, J. Riedi, D. Tanré, and F. Thieuleux: Global analysis of aerosol properties above clouds, *Geophys. Res. Lett.*, 40, 5809–5814, doi:10.1002/2013GL057482, 2013b.
- Waquet, F., Peers, F., Goloub, P., Ducos, F., Thieuleux, F., Derimian, Y., Riedi, J., and Tanré, D., 2014: Retrieval of the Eyjafjallajökull volcanic aerosol optical and microphysical properties from POLDER/PARASOL measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 1755-1768, 2014.
- Waquet, F., J.-C. Pétré, F. Peers, P. Goloub, F. Ducos, F. Thieuleux, and D. Tanré (2016), Global detection of absorbing aerosols over the ocean in the red and near-infrared spectral region, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, doi:10.1002/2016JD025163.
- Wilcox, E. M.: Stratocumulus cloud thickening beneath layers of absorbing smoke aerosol, *Atmos. Chem. Phys.*, 10(23), 11769–11777, doi:10.5194/acp-10-11769-2010, 2010.
- Winker, D. M., Pelon, J., Jr., J. A. C., Ackerman, S. A., Charl- son, R. J., Colarco, P. R., Flamant, P., Fu, Q., Hoff, R. M., Kittaka, C., Kubar, T. L., Treut, H. Le, McCormick, M. P., Mégie, G., Poole, L., Powell, K., Trepte, C., Vaughan, M. A. and Wielicki, B. A.: The CALIPSO Mission: A Global 3D View of Aerosols and Clouds, *B. Am. Meteorol. Soc.*, 91, 1211–1229, <https://doi.org/10.1175/2010BAMS3009.1>, 2010.
- Winker, D. M., Vaughan, M. A., Omar, A., Hu, Y., Powell, K. A., Liu, Z., Hunt, W. H., and Young, S. A.: Overview of the CALIPSO Mission and CALIOP Data Processing Algorithms, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 26, 2310–2323, <https://doi.org/10.1175/2009JTECHA1281.1>, 2009.
- Young, S. A. and Vaughan, M. A.: The Retrieval of Profiles of Particulate Extinction from

Cloud-Aerosol Lidar Infrared Pathfinder Satellite Observations (CALIPSO) Data: Algorithm Description, J. Atmos. Ocean. Tech., 26, 1105–1119, <https://doi.org/10.1175/2008JTECHA1221.1>, 2009.

## **ANNEXE**

### **(Sélection d'articles)**

## Maritime and dust aerosol retrieval from polarized and multispectral active and passive sensors

F. Waquet, J.-F. Léon, and P. Goloub

Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Centre National de la Recherche Scientifique, Université de Lille 1, Lille, France

J. Pelon

Service d'Aéronomie, Centre National de la Recherche Scientifique, Université Pierre et Marie Curie, Paris, France

D. Tanré and J.-L. Deuzé

Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Centre National de la Recherche Scientifique, Université de Lille 1, Lille, France

Received 31 March 2004; revised 21 October 2004; accepted 17 January 2005; published 26 March 2005.

[1] The two-dimensional structure and the optical properties of Saharan dust and maritime aerosols have been investigated over the Mediterranean Sea during October 2001 using airborne and satellite observations. A new airborne downward looking multispectral (490–2200 nm) micropolarimeter (MICROPOL) is used to derive the aerosol optical thickness and effective radius. We present two case studies corresponding to the observations performed during a mineral dust transport from the Sahara to Europe and to an undisturbed marine boundary layer. The dust plume is associated with aerosol optical thickness above 0.2 (at 865 nm), whereas relatively low loading conditions are observed in the maritime case (down to 0.1). The MICROPOL-derived aerosol optical thickness is in an excellent agreement with coincident Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) retrievals for both days. The effective radius retrieved by MICROPOL is also in a good agreement with the one from MODIS in the dust case. In the pure maritime case, this parameter is significantly underestimated by MICROPOL compared to MODIS retrieval. The vertical distribution of aerosol optical parameters is derived from combined two-wavelength backscattering airborne lidar observations and MICROPOL passive measurements. As expected in the case of a long-range transport, the aerosol effective radius within the dust layer is rather constant as a function of the altitude. A surprising low lidar depolarization factor of about 4% is retrieved within the dust plume, suggesting a major contribution of spherical particles. No significant depolarization has been observed in the marine boundary layer. For the given geometry of observation the retrieved aerosol models, which are based on the Mie theory, reproduce the MICROPOL polarized measurements within 5–8% in the dust and maritime case. The use of a nonspherical model increases by a factor of 2 the residual fitting error in polarization in the case of the dust observation. This result is confirmed by the lidar depolarization ratio and indicates that a large part of particles in the dust plume are spherical.

**Citation:** Waquet, F., J.-F. Léon, P. Goloub, J. Pelon, D. Tanré, and J.-L. Deuzé (2005), Maritime and dust aerosol retrieval from polarized and multispectral active and passive sensors, *J. Geophys. Res.*, 110, D10S10, doi:10.1029/2004JD004839.

### 1. Introduction

[2] Many difficulties in assessing the climatic effect of aerosols arise because of the great spatial and temporal variability of their concentration and physical and chemical properties. Mineral dust and maritime aerosols represent the largest contribution of natural aerosols to the total atmospheric burden. Dust and sea-salt concentration in the atmosphere depend on the meteorological conditions and

thus will be directly affected by climate change. In turn, natural aerosols have an impact on the radiative budget and the climate. The coarse fraction of maritime aerosols results from bursting of sea foam in windy conditions [Blanchard and Woodcock, 1980], while mineral dust results from the wind erosion of arid and semiarid areas. The properties of mineral dust depend on source locations and physical and chemical processes occurring during the transport. The presence of dust in the atmosphere is generally due to sporadic updraft of high load of material leading to strong optical thickness, whereas an important characteristic of the oceanic aerosol is the substantially lower aerosol loading. In

the Mediterranean atmosphere, high optical thickness with a low spectral dependency are usually characteristic of a Saharan dust event [Hamonou *et al.*, 1999; Léon *et al.*, 1999].

[3] Many efforts have been devoted to better characterize the physical and optical aerosol properties in the frame of the development of network of ground-based instruments and Earth's observation satellite missions. The large range of spectral and angular observations provided by the ground-based Sun photometers of the Aerosol Robotic Network (AERONET) [Holben *et al.*, 1998] are used to derive detailed aerosol properties in key locations. Satellite remote sensing offers a global and quasi-continuous monitoring of the aerosol properties [Kaufman *et al.*, 2002]. The new generation of satellite sensors provides enhanced capacities for aerosol monitoring, like the Moderate Imaging Spectroradiometer (MODIS) and Polarization and Directionality of Earth's Reflectances (POLDER) [Deschamps *et al.*, 1994]. The MODIS [Salomonson *et al.*, 1989] is aboard Terra and Aqua platforms and has a wide spectral capacity ranging from the visible (VIS) to the shortwave infrared (SWIR). The observations performed in the SWIR are important to retrieve the contribution of the coarse mode of particles to the total aerosol optical thickness. The aerosol retrieval algorithm [Tanré *et al.*, 1997] uses this wide spectral range (0.55–2.13 nm) to derive the spectral aerosol optical thickness and aerosol effective radius over the oceans. On the basis of a different instrumental concept, the POLDER was aboard ADEOS-1 and ADEOS-2 platforms and had the capacity to measure the total and polarized top of the atmosphere radiances in the VIS and the near-infrared (NIR). The POLDER retrieval algorithm [Deuzé *et al.*, 2000] derives from the total and polarized radiances the aerosol optical thickness and size parameters. It further provides information on the shape of particles from the analysis of the polarized angular scattered radiance. A new prototype of the future POLDER instrument, including polarization from the UV up to 2200 nm, is being developed at the Laboratoire d' Optique Atmosphérique. Its development is based on the results obtained with a polarimeter, a satellite type sensor called MICROPOL, developed with the support of the Centre National d'Etudes Spatiales (CNES). MICROPOL has been already used during several field experiments to test new methodologies based on spectral and polarized measurements performed from the UV to solar infrared. An algorithm over ocean, based on MODIS approach, has been developed for this instrument [Goloub *et al.*, 2003].

[4] Passive remote sensors miss the vertical distribution of aerosols in the atmospheric column. Lidars are currently the most sophisticated optical systems giving a description on the aerosols atmospheric profiles, and several inversion techniques were proposed for the retrieval of physical particle parameters from ground-based [Müller *et al.*, 1999a; 1999b; Sicard *et al.*, 2002] or airborne [Flamant *et al.*, 1998; Pelon *et al.*, 2002] lidar observations. It has been shown that a synergy between active (lidar) and passive (radiometer) devices results in improving the retrieval of aerosol properties [Kaufman *et al.*, 2003a; Léon *et al.*, 2003]. It is of particular importance in the frame of the Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation (CALIPSO) [Winker *et al.*, 2002], which will be

launched early 2005 and will be part of a constellation of satellites called the AQUA train, including MODIS and POLDER sensors. The CALIPSO lidar (CALIOP) is a frequency-doubled Nd:YAG laser that transmits laser light simultaneously at 532 and 1064 nm and includes a cross-polarization detection channel at 532 nm. This instrument will provide high-resolution vertical profiles of aerosols and clouds. The synergy between MODIS, POLDER, and CALIPSO is then able to significantly enhance our understanding of the aerosol distribution at a global scale. Comparable synergistic approaches were developed and tested during field campaigns where airborne lidar observations acquired simultaneously with MODIS overpasses were available to be cited: the Saharan Dust Experiment (SHADE) [Léon *et al.*, 2003; Kaufman *et al.*, 2003a] and the Southern African Regional science Initiative (SAFARI) [Kaufman *et al.*, 2003b].

[5] The present paper focuses on the retrieval of the properties of natural aerosols including mineral dust and maritime aerosols derived from passive (MICROPOL) and active (the elastic backscatter lidar Lidar pour l'Etude des Interactions Ae Rosols Nuages Dynamique Rayonnement et du Cycle de l'Eau (LEANDRE)) airborne instruments. To solve most of the ambiguity in deriving aerosol profile from lidar alone, we use the MICROPOL observations to constrain the inversion of the lidar signal in terms of aerosol optical thickness and effective radius. Both instruments were deployed during the Field Radiation Experiment Natural Cirrus and High Cloud (FRENCH) [Brogniez *et al.*, 2004] experiment, which took place over the northwestern Mediterranean Sea. The description of the flights, the observations, and the technical characteristics concerning each instrument is presented in the next section. Then we present and test the capacity of the MICROPOL to derive aerosols properties over the ocean surface. The results of the MICROPOL inversion are compared to the MODIS retrievals. In the last section we apply a synergy between MICROPOL and LEANDRE to better characterize the vertical distribution of maritime and dust aerosols.

## 2. Field Experiment

[6] The main purpose of the FRENCH campaign was to acquire simultaneous active and passive aircraft observations to characterize cirrus and high-level clouds. The French research aircraft FALCON-20 (F20) participated to this campaign from 27 September to 12 October 2001. Ten flights were performed during the campaign; four of them were dedicated to aerosol characterization over the Mediterranean Sea. The characteristics of the ten flights including the time and date, the altitude, the type of surface overflow, and the type of observations are given in Table 1. The F20 was equipped with the backscatter lidar LEANDRE-1 [Pelon *et al.*, 1990] and the POLDER airborne simulator [Deuzé *et al.*, 1993]. The new longwave and shortwave polarimeter MICROPOL was also operated aboard the F20. Combined ground-based and satellite observations were also available. Most of the flights were performed as close as possible to the TERRA overpass. Two days, 8 and 11 October, were particularly relevant for maritime and mineral dust aerosol characterization. The airborne measurements were acquired along round-trip transects of

**Table 1.** Main Characteristics of the Ten Flights Performed During the FRENCH Experiment<sup>a</sup>

| Date            | Start-End Time, UT | Altitude, km | Type of Surface | Observations   |
|-----------------|--------------------|--------------|-----------------|--|
| 25/9/01         | 1410–1440          | 11           | ocean           | cirrus and cumulus between 6 and 10 km                                       |
| <b>27/9/01</b>  | 0840–1445          | 9            | ocean and land  | several clouds just below the aircraft ( $\sim 9$ km)                        |
| 28/9/01         | 1345–1355          | 11           | land            | cirrus (6–12 km) and altostratus   |
| 30/9/01         | 1255–1450          | 12           | ocean           | cirrus (6–12 km) and altostratus   |
| <b>1/10/01</b>  | 1245–1445          | 12           | ocean           | very clear condition, several low clouds and cirrus                          |
| 5/10/01         | 0850–0940          | 11.5         | ocean and land  | thick cirrus and altostratus   |
| 7/10/01         | 1155–1345          | 12           | ocean           | cirrus (8–10 km) and altostratus   |
| <b>8/10/01</b>  | 1150–1340          | 10–12        | ocean and land  | low loading condition and cloudy structures within the marine boundary layer |
| <b>11/10/01</b> | 1030–1230          | 11.5         | ocean and land  | dust loading condition, a thin cirrus ( $\sim 11$ km)                        |
| 12/10/01        | 0820–0920          | 9            | land            | dust loading condition, northward flight over France                         |

<sup>a</sup>The dates in boldface correspond to flights dedicated to an aerosol study over the Mediterranean Sea.

nearly 400 km between the southern coast of France and Corsica Island. The two flights were performed on 8 and 11 October, respectively, began at 1150 and 1030 UT and ended at 1340 and 1300 UT.

## 2.1. Instrumental Setup

[7] The ground-based stations of Tarbes (43.25°N, 0°E), Aire-sur-Adour (43.7°N, 0.25°E), Toulouse (43.57°N, 1.37°E), and Avignon (43.91°N, 4.87°E) located in the south of France, were equipped with an automatic Cimel Sun photometer of AERONET. The operational inversion algorithm [Dubovik and King, 2000] provides the spectral aerosol optical thickness, the aerosol complex refractive index, and the particle size distribution between 0.05 and 15  $\mu\text{m}$ . An additional manual Sun photometer was set up near the seashore at 3°53' E–43°36' N on 11 October.

[8] Measurements of the vertical distribution of scattering layer were performed using the backscattering lidar LEANDRE-1. The laser is a Nd:Yag delivering 10 ns pulses of 40 and 190 mJ in the 532 and 1064 nm channels, respectively. The laser repetition rate is 12 Hz, which leads to a 1 s time averaging over 12 shots, corresponding to an horizontal resolution of about 200 m. The emitted beam has a 3 mrd divergence (corresponding to a spot diameter of 30 m at the surface when the aircraft is flying at an altitude of 10 km). The receiving telescope has a diameter of 30 cm to keep the system compact. The depolarization ratio is derived from the ratio of the cross-polarized to the parallel lidar return signal.

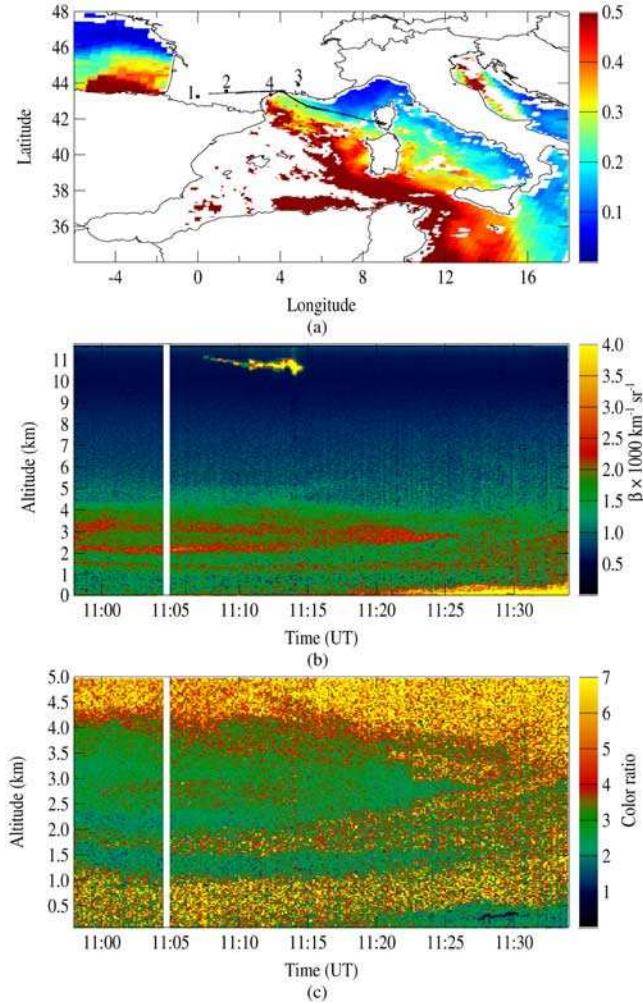
[9] The MICROPOL polarimeter operates in five bands centered at 490, 670, 865, 1600, and 2200 nm. For each wavelength, there are three separate optical systems composed of a collimator, a lens, an interferential filter, a polarizer, and a detector. The angle between the direction of the three polarizers is 60°. This configuration is considered to be the optimal configuration to derive the angle of polarization and the linear polarized radiance. The total and polarized normalized radiances are derived using the calibration and the combination of these three simultaneous measurements [Herman et al., 1997a]. A set of total and polarized normalized radiances at the 5 wavelengths is done in no more than 7.5 ms. In the 1600 and 2200 nm channels the detectors are stabilized at a temperature of  $-10^\circ\text{C}$  (InGaAs detectors). It has been shown that the effect of temperature variation on calibration is smaller than 2% at maximum. The absolute accuracy is about 2–3% for the wavelengths 490, 670, 865, and 1600 nm and reaches 6% for the 2200 nm channels. The noise equivalent differential spectral luminance in total ( $\text{Ne}\Delta L$ ) and polarized ( $\text{Ne}\Delta L_p$ )

normalized radiance is reported in Table 2. It corresponds to the radiometric noise converted into a normalized radiance noise. This quantity is experimentally evaluated and given here for a degree of polarization close to 30%, representative of the condition of the experiment. The degree of polarization is defined as the ratio of the polarized radiance to the total radiance [Deuzé et al., 1993]. We have also estimated the corresponding noise equivalent differential optical thickness  $\text{Ne}\Delta\tau$  at 2200 nm using the single scattering approximation in the most unfavorable conditions [Tanré et al., 1997]. When considering a scattering angle of 120°,  $\text{Ne}\Delta\tau$  is equal to  $3.10^{-3}$  and  $2.10^{-3}$ , respectively for a maritime and mineral dust model [Shettle and Fenn, 1979].

[10] MODIS was successfully launched in December 1999 on board NASA's spacecraft Terra and began collecting data in March 2000. The instrument performs spectral measurements from 415 to 14235 nm in 32 spectral bands. The resolution of the subnadir pixel is from 250 m  $\times$  250 m to 1 km  $\times$  1 km, while the aerosol parameters are retrieved at a resolution of 10 km  $\times$  10 km. An operational algorithm, based on a lookup table (LUT) approach, has been developed for deriving aerosol properties over open ocean surfaces. The algorithm uses six spectral channels ranging from 550 to 2130 nm. The principle of the inversion and the description of the aerosol models are presented in the section 3.1. The main aerosol products derived from MODIS include the spectral aerosol optical thickness (AOT), the effective radius of the size distribution, and the fraction of the total aerosol optical thickness coming from the fine aerosol mode ( $\eta$ ). MODIS aerosol products have been validated using AERONET Sun photometer measurements [Remer et al., 2002]. The spectral AOT over ocean is retrieved within an accuracy of  $0.03 \pm 0.05 \times \text{AOT}$ . The absolute accuracy on the effective radius is  $\pm 0.1 \mu\text{m}$ . A sensitivity study has emphasized the difficulty to retrieve the parameter  $\eta$  accurately, which is generally considered as an estimate with an uncertainty of  $\pm 0.25$  [Tanré et al., 1997].

**Table 2.** MICROPOL Radiometric Accuracy in Total ( $\text{Ne}\Delta L$ ) and Polarized ( $\text{Ne}\Delta L_p$ ) Normalized Radiance and for the Five Bands

| Center Wavelength, nm | Maximum Radiance | $\text{Ne}\Delta L$  | $\text{Ne}\Delta L_p$ |
|-----------------------|------------------|----------------------|-----------------------|
| 490                   | 0.30             | $1 \times 10^{-5}$   | $6 \times 10^{-5}$    |
| 670                   | 0.23             | $9.5 \times 10^{-6}$ | $8 \times 10^{-5}$    |
| 865                   | 0.44             | $8 \times 10^{-6}$   | $7 \times 10^{-5}$    |
| 1600                  | 0.94             | $1.5 \times 10^{-5}$ | $1 \times 10^{-4}$    |
| 2200                  | 0.62             | $4 \times 10^{-5}$   | $8 \times 10^{-5}$    |



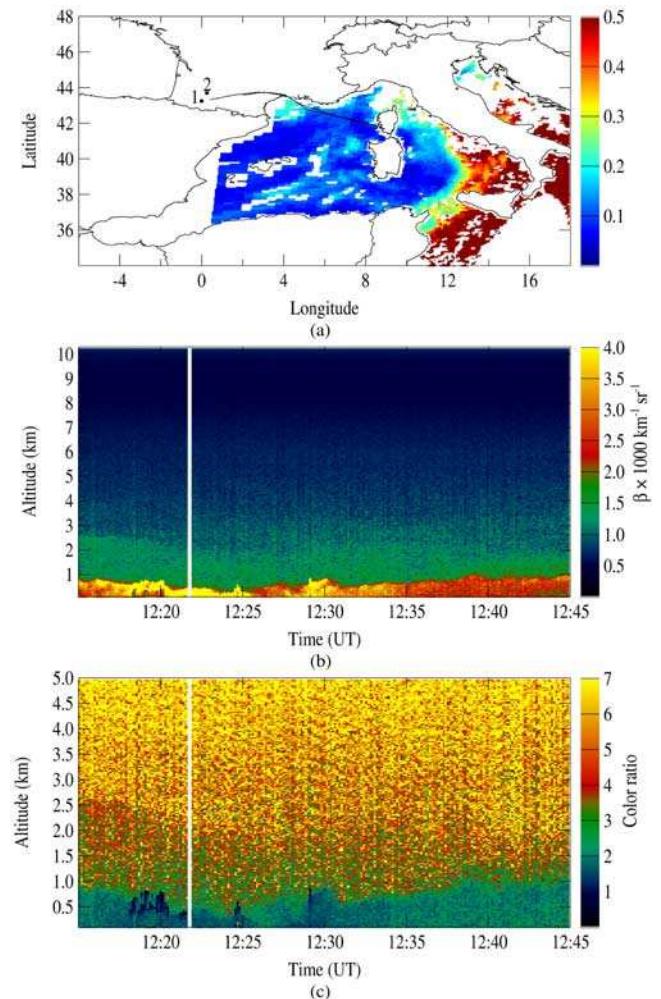
**Figure 1.** (a) MODIS aerosol optical thickness at 865 nm, on 11 October. The black dots correspond to the locations of the Sun photometers of Tarbes (1), Toulouse (2), Avignon (3), and the location of an additional Sun photometer settled along the sea shore (4). (b) Lidar attenuated backscatter coefficients at 532 nm and (c) pseudo-color ratio computed over the 532 and 1064 nm lidar backscatter coefficients measured below the track of the airplane.

## 2.2. Observations

[11] Synoptic meteorological observations revealed a high-pressure system over the eastern part of France and a low-pressure system over the Canary Island, leading to a southeasterly advection of air masses from Africa potentially rich in desert particles. Figure 1a displays the aerosol optical thickness (at 865 nm) derived from MODIS on 11 October. Areas where the retrieval is not possible, like cloudy sky or observations in the specular direction, are drawn in white. Continental areas are also in white. The black solid lines are the ground tracks of the F20 for the flight performed on the same day between 1100 and 1300 UTC. Acquisition time of MODIS data is about 1030 UT. The observed situation corresponds to a transport of a large dust plume, associated with AOT above 0.5 and extending from the African coast, to the northwestern part of the Mediterranean Sea. The minimum and maximum AOT observed in Toulouse and Tarbes by the Sun photometer were 0.2 and 0.5, respectively.

The daily average Angström exponent, computed between the 670 and 865 nm channels [Deuzé et al., 2000], was 0.25 for Toulouse and close to 0 for Tarbes. It indicates the presence of large particles, as expected in the case of a mineral dust transport. Near the area of investigation the AOT measured by the Avignon Sun photometer was rather low, between 0.1 and 0.2, while the Angström exponent was between 1.0 and 0.1 along the day. As shown on Figure 1a, the F20 has progressively deviated from the deep plume region. The MODIS AOT sampled along the F20 aircraft tracks decreases from 0.25 near the continent to 0.15 or less near Corsica.

[12] The lidar return signal depends on the aerosol extinction and backscatter cross section as well as particle number concentration. The lidar signal is normalized and range-corrected to provide the attenuated backscatter coefficient presented in Figures 1b and 2b. The calibration factor is derived by matching portions of the measured backscattering profile taken to arise from pure molecular scattering.



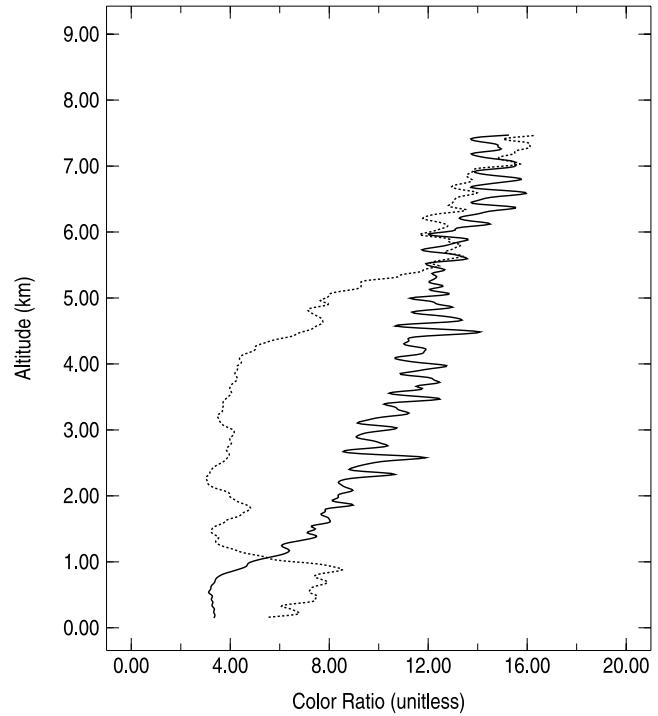
**Figure 2.** (a) MODIS aerosol optical thickness at 865 nm on 8 October. The black dots correspond to the locations of the Sun photometers of Tarbes (1) and Aire-sur-Adour (2). (b) Lidar attenuated backscatter coefficients at 532 nm and (c) pseudo-color ratio computed over the 532 and 1064 nm lidar backscatter coefficients measured below the track of the airplane.

The pure molecular backscatter coefficient is measured in the upper part of the atmosphere just below the aircraft. The attenuated backscatter coefficient corresponds to the product of the total (molecules and aerosols) backscatter coefficient for a given altitude by the two-way transmission between the laser source and the given altitude. The attenuated lidar backscatter coefficient is used to depict the vertical structure of the aerosol. Figure 1b presents the attenuated backscatter coefficient  $\beta$  measured at 532 nm on 11 October from 1058 UT ( $43.35^{\circ}\text{N}$ ,  $4.35^{\circ}\text{E}$ ) to 1135 UT ( $42.22^{\circ}\text{N}$ ,  $7.26^{\circ}\text{E}$ ) during the transect from Corsica to the continent shown in Figure 1a. The ratio of the 532–1064 nm attenuated backscatter coefficient (hereinafter called the pseudo-color ratio (PCR), which is unitless) is indicative of the mean size of the particles. The PCR (presented in Figure 1c) decreases as a function of size particle, equal to 16 for molecules and close to 0 for the largest aerosols or droplets. A different vertical scale (from 0 to 5 km) is used for the PCR to focus on the aerosol layer and the low cloud structure.

[13] The lidar cross section (Figure 1b) reveals a deep dust layer between the sea surface up to 6 km high. Several maxima in the backscatter coefficient are observed within the plume. The first is located at about 1.5 km and remains at the same altitude over the whole flight. Two additional maxima are observed between 2 and 4 km. As the aircraft moves over the sea (corresponding to a time increase), there is only one deep plume located at 3 km high. Low values of the color ratio, ranging from 1.5 to 3.5, are associated with the dust plume. An increase in the attenuated backscatter coefficient associated with a sharp decrease in the PCR is observed in the marine boundary layer at the end of the transect. This indicates the impact of the condensation of water onto the particles. The high values of backscatter coefficient observed between 1107 and 1115 UT at 11 km high can be associated with the occurrence of a thin cirrus cloud.

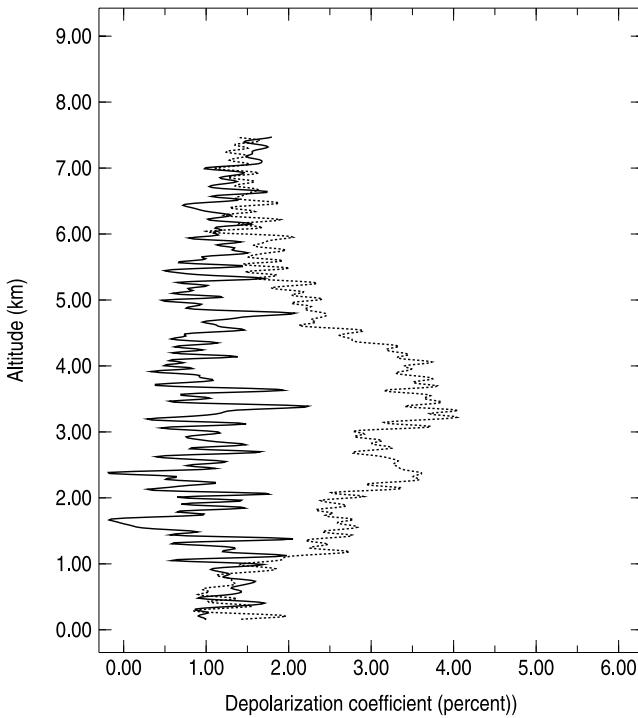
[14] The origin of the dust layer located between 2 and 4 km high (Figure 1b) was inferred using back trajectories from the NOAA Hybird Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory (HYSPLIT) model (<http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>) and using the Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) absorbing aerosol index [Herman *et al.*, 1997b] (<http://toms.gsfc.nasa.gov/aerosols/aerosols.html>). The dust source was identified to be located over the center of the Sahara, northwest of the Hoggar Massif (south Algeria). This location, which receives extensive drainage from the Hoggar, is known to be an area of strong dust emission [Prospero *et al.*, 2002]. The TOMS aerosol index suggests that the dust was uplifted on 9 October and then advected over Algeria and the Mediterranean Sea following a straight south-north axis prior to its detection on 11 October.

[15] The MODIS data acquired on 8 October at 1000 UTC are reported in Figure 2a. We can observe that the optical depth remains small, below 0.15 over the western part of the Mediterranean Sea. AOT values larger than 0.4 appear on the eastern part of the map, corresponding to an anterior dust outbreak. The daily average AOT measured at Tarbes and Aire-sur-Adour were 0.065 and 0.07 and did not vary much during the day, within  $\pm 0.01$ . The Angström exponent was 0.5 for both Sun photometers. It indicates that the contribution of anthropogenic aerosols from the continent to the area of measurements is minimized.



**Figure 3.** Vertical profiles of the pseudo-color ratio on (dashed line) 11 October and (solid line) 8 October.

[16] A deep marine boundary layer is observed to develop up to 1 km high over the sea surface. The backscatter coefficient in the marine boundary layer, whose height remains at about 600 m, is much larger as small cumulus developed (around 1220 and 1230 UT). Figures 2b and 2c give lidar observations from 1215 ( $43.45^{\circ}\text{N}$ ,  $4.25^{\circ}\text{E}$ ) to 1245 UT ( $41.78^{\circ}\text{N}$ ,  $8.5^{\circ}\text{E}$ ) over the same area as in Figures 1b and 1c, but for this pure maritime case. The increase in the attenuated backscatter coefficient is well correlated with the decrease in the PCR (e.g., between 1218 and 1224 UT) in the vicinity of shallow clouds embedded into the marine boundary layer. An increase in the backscatter coefficient associated with a small value of the PCR shows that a fairly significant number of aerosol particles are present above the marine boundary layer up to 3 and 4 km high. The average PCR profile given in Figure 3 clearly indicates the presence of coarse particles up to 6 km high on 11 October. The marine boundary layer is characterized by a larger value of the pseudo-color ratio than in the dust layer above. The PCR in the marine boundary layer is also higher on 11 October than on 8 October. It indicates that the dust transport occurs above the marine boundary layer and slightly affects it. The color ratio difference observed between 8 and 11 October may be due to a difference in the sea-salt concentration as the result of a difference in the sea surface wind speed (not measured). In the clean marine boundary layer the aerosol composition is basically a mix of sea salt and sulfates particles. The sulfate aerosol content depends on the type of air mass and its history and may have both a natural or anthropogenic origin. The sea particles have a natural origin and their concentration depends on the surface wind speed [Flamant *et al.*, 1998]. The average



**Figure 4.** Depolarization coefficients on (dashed line) 11 October and (solid line) 8 October.

wind speed (NOAA Air Resources Laboratory) at the surface was  $10 \text{ m s}^{-1}$  and was oriented from west to east.

[17] The lidar generates short pulses of polarized light. Radiation backscattered by homogeneous spherical particles will maintain the original (parallel) polarization, whereas nonspherical particles induce some degree of polarization [Sassen and Takano, 2000]. Anisotropy in the structure of air molecules generates a small amount (1.4% in the case of our lidar system) of depolarization. Figure 4 presents the average depolarization ratio profiles for 11 and 8 October. Although measurements are noisy, a depolarization ratio up to 4% is observed within the dust layer whereas no depolarization is observed in the marine boundary layer. It confirms that there is no dust in the marine boundary layer. In the case of the maritime air profile, no significant depolarization is observed.

### 3. Methods and Results

#### 3.1. MICROPOL Algorithm and Models

[18] An operational algorithm has been developed for MICROPOL, dedicated to the retrieval of aerosol properties over dark ocean surface [Goloub et al., 2003]. The algorithm is similar to the MODIS one [Tanré et al., 1997] and has been adapted to the MICROPOL wavelengths. The MICROPOL measures the total radiance and the state of polarization of the light reflected by the atmosphere-surface system at the five given wavelengths. In the following we consider two retrieval schemes. The first one makes use of total spectral radiances, while the second one uses total and polarized radiances. Both inversions are based on a lookup table approach, where we use the successive order of multiple scattering code [Deuzé et al., 1988] for the computation of the total and polarized radiances over the ocean.

It accounts for scattering by molecules and aerosol particles as well as by foam and also accounts for Sun glint (see the Cox and Munk [1954] model). Computations are performed for several values of the atmospheric aerosol optical thickness from 0 (pure Rayleigh scattering) to 3 (turbid atmosphere). The lookup table is built for a set of solar zenith angles  $\theta_s$ , viewing zenith angles  $\theta_v$ , and relative azimuth  $\phi$ . The lookup table is generated for a set of aerosol models, which consist of four small and five large modes. We assume that the aerosol size distribution follows a bimodal size distribution composed of two lognormal modes. The single-mode lognormal distribution function is defined in equation (1) and is given for a number distribution:

$$\frac{dN(r)}{dr} = \frac{N_0}{r\sigma_m\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{[\ln(r/r_m)]^2}{2\sigma_m^2}\right], \quad (1)$$

where  $N_0$  is the density number ( $\text{cm}^{-2}$ ),  $r_m$  is the mean radius of the number distribution;  $\sigma_m$  is the standard deviation of  $\ln(r)$ . The aerosol models are the same as in the MODIS retrieval [Tanré et al., 1997]. The parameters  $\sigma_m$ ,  $r_m$ , and the physical properties of the aerosol models are given in Table 3. The refractive index presented in Table 3 is given for each models at 865 nm. The refractive index is slightly wavelength-dependent. The refractive index at each wavelength is given in the work of Remer et al. [2002]. The optical properties of the first nine models are computed using the Mie theory. The models numbered from 1 to 4 refer to the small particle modes with effective radii (defined as the ratio of the third to the second moment of the size distribution), ranging from 0.08 to 0.15  $\mu\text{m}$ , while models numbered from 5 to 9 refer to the large particle mode with effective radii ranging from 0.97 to 2.36  $\mu\text{m}$ . The mineral dust and maritime aerosol models identified here as 8 and 9 and as 5, 6, and 7 are mainly distinguished on one hand by the real part of the refractive index, respectively equal to 1.53 for mineral dust and 1.45 for maritime aerosols, and on the other hand by the values of the effective radii, ranging respectively from 1.46 to 2.36  $\mu\text{m}$  for the mineral dust, and from 0.97 to 1.94  $\mu\text{m}$  for maritime aerosols. An experimental model describing the scattering properties of large nonspherical particles [Volten et al., 2001] has been added to the nine former aerosol models. This model results from laboratory measurements of the scattering function at 675 and 440 nm of samples of mineral dust. We assume that the scattering properties (total and polarized) of the experi-

**Table 3.** Microphysical and Optical Properties of Aerosol Models<sup>a</sup>

| Model | $r_m$ | $\sigma_m$ | $r_{\text{eff}}$ | $\sigma_{\text{eff}}$ | $m_r - m_i$  | Comments                    |
|-------|-------|------------|------------------|-----------------------|--------------|-----------------------------|
| 1     | 0.07  | 1.49       | 0.10             | 1.17                  | 1.45–0.0035i | wet water soluble type      |
| 2     | 0.06  | 1.82       | 0.15             | 1.39                  | 1.45–0.0035i | wet water soluble type      |
| 3     | 0.08  | 1.82       | 0.19             | 1.39                  | 1.40–0.0020i | water soluble with humidity |
| 4     | 0.10  | 1.82       | 0.24             | 1.39                  | 1.40–0.0020i | water soluble with humidity |
| 5     | 0.40  | 1.82       | 0.97             | 1.39                  | 1.45–0.0035i | wet sea salt type           |
| 6     | 0.60  | 1.82       | 1.46             | 1.39                  | 1.45–0.0035i | wet sea salt type           |
| 7     | 0.80  | 1.82       | 1.94             | 1.39                  | 1.45–0.0035i | wet sea salt type           |
| 8     | 0.60  | 1.82       | 1.46             | 1.39                  | 1.53–0.0010i | dust-like type              |
| 9     | 0.50  | 2.22       | 2.36             | 1.66                  | 1.53–0.0010i | dust-like type              |

<sup>a</sup>Model 10 is nonspherical.

mental model are also valid in the middle infrared up to 2200 nm. The phase function of the nonspherical model and the phase function of the large spherical models 5 and 9 are given in Figure 5 at a wavelength of 865 nm. We can notice that the main feature of the nonspherical phase function is a relatively flat directional behavior in the backscattering direction compared to an increase of the phase function observed for large spherical particle.

[19] Our approach to use the LUT in the algorithm is based on the simplification suggested by *Wang and Gordon* [1994] that the multiple scattering radiance from two lognormal modes can be approximated by the weighted of the radiance of each individual mode for the same optical thickness. The method is exact in the single-scattering approximation. In other cases the method usually reproduces the aerosol contribution within 2–3% for aerosol optical thickness as large as 0.50 and for Sun and viewing angles as large as 80° and 70°. Difficulties may be encountered when the aerosol is strongly absorbing; in that case, this simplification is not valid. However, this concept is quite suitable in our conditions. Then the total spectral radiance  $L_\lambda^c$  at the instrument level is written as the sum of the small particle radiance  $L_\lambda^s$  and the large particle radiance  $L_\lambda^l$  and is computed for the same aerosol optical thickness  $\delta$ , molecular optical thickness, and surface contribution. The small and large particle radiances are weighted by the small mode concentration  $\eta$ :

$$L_\lambda^c(\delta, \mu_s, \mu_v, \phi) = \eta L_\lambda^s(\delta, \mu_s, \mu_v, \phi) + (1 - \eta)L_\lambda^l(\delta, \mu_s, \mu_v, \phi). \quad (2)$$

First, the optical thickness is estimated from total radiance at 865 nm by an interpolation method for three values of the small mode concentration (0, 0.5, and 1) and for the  $4 \times 6$  aerosol model combinations. Then the radiances at the other wavelengths, namely 670, 1600, and 2200 nm, are simulated using equation (2). The residual error  $\varepsilon_R$  is obtained following equation (3). Sensitivity tests on the MODIS algorithm have shown that  $\varepsilon_R$  is a good indicator of the quality of the retrieval [*Tanré et al.*, 1997].

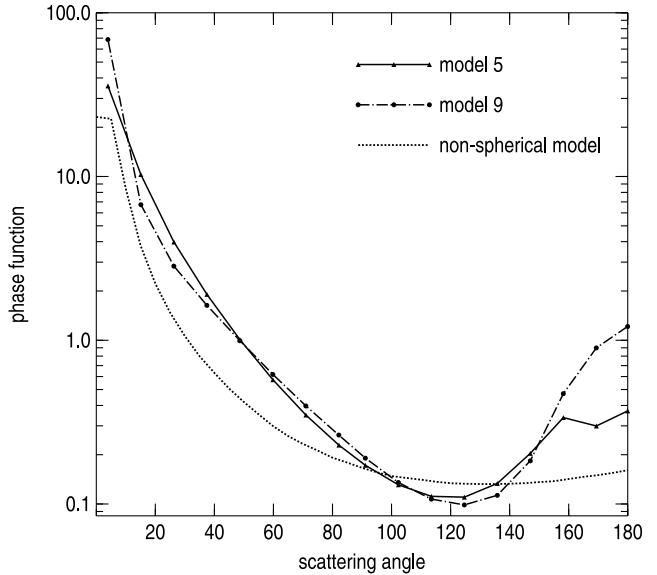
$$\varepsilon_R = \sqrt{\frac{1}{4} \sum_{k=1}^4 \left( \frac{L_k^m(\mu_s, \mu_v, \phi) - L_k^c(\mu_s, \mu_v, \phi)}{L_k^m + 0.01} \right)^2}. \quad (3)$$

$L_k^m$  is the total normalized measured radiances for the channel  $k$ , and  $L_k^c$  is the simulated one.

[20] The surface contribution at 490 nm is very uncertain when no information on the ocean color is available. As it may result in errors in the estimate of the aerosol contribution, the total radiance at 490 nm is not used in this retrieval scheme. The small particle concentration is then adjusted iteratively to minimize residual error for every  $4 \times 6$  combination. The combination that gives the smallest  $\varepsilon_R$  for the best selected value of  $\eta$  is called “R solution” where “R” stands for radiance. Then the derived solution of AOT and  $\eta$  are used to compute the residual error  $\varepsilon_{RP}$  in the polarized channels following equation (4).

$$\varepsilon_{RP} = \sqrt{\frac{1}{5} \sum_{k=1}^5 \left( \frac{Lp_k^m(\mu_s, \mu_v, \phi) - Lp_k^c(\mu_s, \mu_v, \phi)}{Lp_k^m + 0.001} \right)^2}. \quad (4)$$

$Lp$  stands for normalized polarized radiance.



**Figure 5.** The scattering phase function for the non-spherical model and the MODIS large spherical model numbered 5 and 9 (see Table 3).

[21] The polarization of the ocean surface generated by pigment concentration at 490 nm can be neglected [*Chami et al.*, 2001]. The atmospheric polarized contribution is then largely predominant at this wavelength. Then we use the polarized channel at 490 nm in this retrieval scheme. The single scattering contribution in polarized intensities is higher than in total intensities because it is principally low orders of scattering that contribute to polarized radiation [*Leroy et al.*, 1997]. Since the Wang and Gordon approximation is exact for single scattering, then equation (2) is even more likely to be applicable to polarized intensities (as compared to total intensities). We reject the solutions for which the total residual error  $\varepsilon_T = (\varepsilon_R + \varepsilon_{RP})/2$ , computed for the total and polarized radiances, is larger than 5%. Another solution is found by minimizing  $\varepsilon_T$ . This solution is called “R + P solution.” A different set of aerosol parameters than for the “R solution” can be retrieved. We consider the “R + P solution” only when the retrievals exhibit significant differences with the “R solution.” Where the difference is as important as the accuracy associated to the retrievals (the accuracy on MODIS retrievals, given in section 2.1, is considered here), both solutions are presented and compared.

### 3.2. MICROPOL Retrievals

[22] In order to point out the spectral behavior of the optical properties of the aerosol (maritime and dust) observed during the campaign, we have selected two short transects per day. Mean reflectance and standard deviations computed over the four selected oceanic zones are reported in Tables 4a and 4b for the total and polarized reflectances, respectively. The reflectance is defined as the ratio of the normalized radiance to the cosine of the solar zenith angle [*Deuzé et al.*, 1993]. The selected areas correspond to two portions of the flight between 1102 and 1107 UT, and 1115 and 1120 UT on 11 October, as well as on 8 October between 1126–1229 and 1235–1240 UT. The viewing geometry is nearly the same for both days. The solar zenith

**Table 4a.** Mean Reflectances Expressed in Percent and Standard Deviations for the Transects Selected on 8 October (Zones 1 and 2) and on 11 October 2001 (Zones 3 and 4)

| Band, nm | Zone 1       | Zone 2        | Zone 3       | Zone 4       |
|----------|--------------|---------------|--------------|--------------|
| 670      | 1.37 ± 0.02  | 1.375 ± 0.025 | 2.46 ± 0.05  | 2.12 ± 0.04  |
| 865      | 0.69 ± 0.02  | 0.72 ± 0.025  | 1.68 ± 0.05  | 1.35 ± 0.035 |
| 1600     | 0.25 ± 0.025 | 0.30 ± 0.02   | 0.99 ± 0.05  | 0.72 ± 0.025 |
| 2200     | 0.13 ± 0.02  | 0.165 ± 0.015 | 0.57 ± 0.035 | 0.41 ± 0.015 |

is about  $51^\circ$  ( $\pm 2^\circ$ ) for both days and all observations are performed at nadir. The scattering angle is close to  $130^\circ$ . The average altitude of the aircraft was 11.5 and 10 km on 11 and 8 October, respectively.

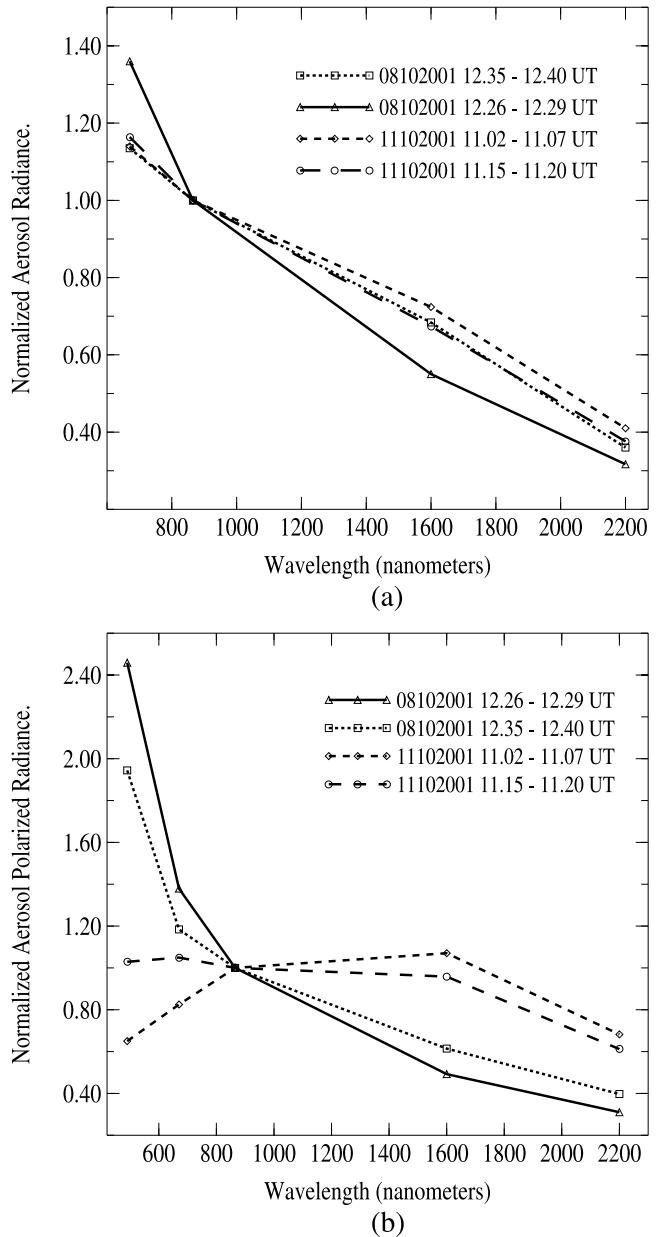
[23] The total and polarized reflectances increase as the wavelength decreases due to the impact of molecular scattering, as expected. In the worst conditions the signal-to-noise ratio is about 10 in polarized reflectance and 30 in total reflectance. It gives a high level of confidence into the measurements performed by this new instrument. After subtracting in each band the molecular component and the surface contribution (estimated using the Cox and Munk [1954] model), we have plotted the total and polarized reflectances, normalized at 865 nm, as a function of the wavelength, in Figures 6a and 6b, respectively. The 490 nm channel in total radiance is not used in the aerosol retrieval scheme and not shown in Figure 6a because of the uncertainty in the estimation of water leaving radiance. The spectral behavior, in total reflectance, related to mineral dust case and maritime aerosol is quite similar. This result suggests that retrieved size parameters for both days should be comparable. However, a difference in the slope value can be observed between the two transects sampled for maritime aerosols study. The polarized spectral dependence displayed on Figure 6b is significantly more pronounced for oceanic aerosols and confirms that polarization can offer a powerful tool for remote sensing of aerosol type.

[24] We first present the MICROPOL retrievals obtained for the “R solution” where the results presented hereafter are averaged over 5 s. Figures 7a and 7b show the aerosol optical thickness at 865 nm and the effective radius retrieved from MICROPOL observations for the dusty day of 11 October. Missing parts correspond to cloudy structures detected on the lidar cross section (Figures 1b and 1c). The gradient in the MODIS AOT (Figure 1a) is also observed in the MICROPOL retrieved AOT on Figure 7a. The AOT decreases from 0.23 to 0.11 between the French coast and the Corsica Island. The Sun photometer posted on the French seashore (located at  $3^\circ 53' E$ ,  $43^\circ 36' N$ ; see Figure 1a)

**Table 4b.** Mean Polarized Reflectances Expressed in Percent and Standard Deviations for the Corresponding Transect<sup>a</sup>

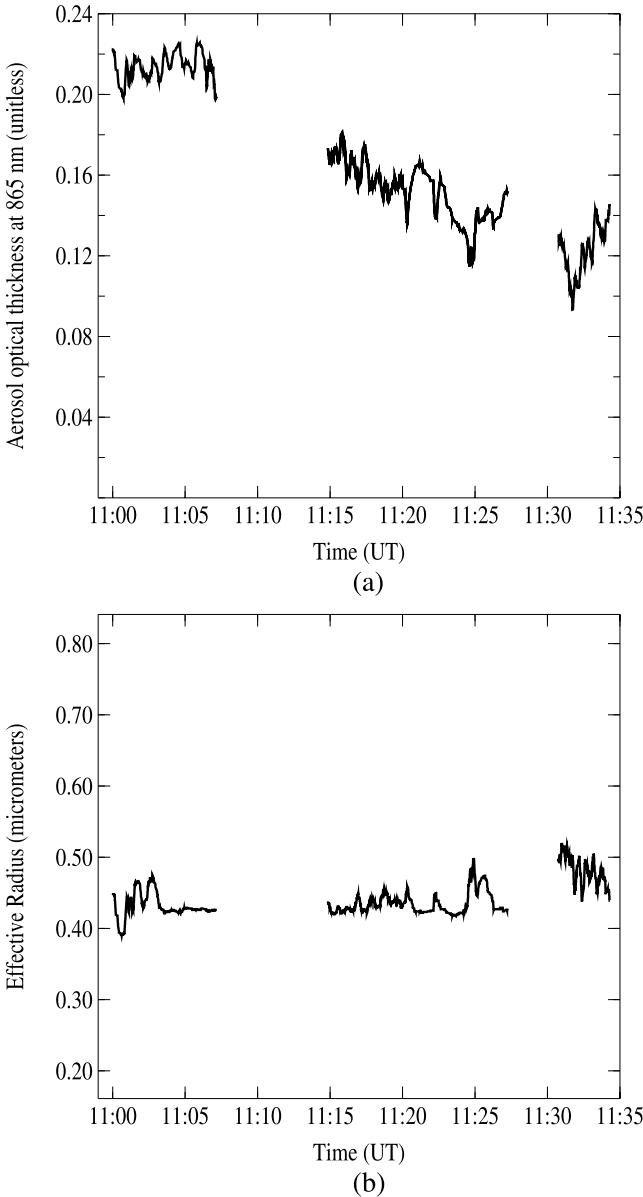
| Band, nm | Zone 1        | Zone 2       | Zone 3       | Zone 4       |
|----------|---------------|--------------|--------------|--------------|
| 490      | 1.47 ± 0.04   | 1.52 ± 0.025 | 1.6 ± 0.05   | 1.46 ± 0.05  |
| 670      | 0.515 ± 0.015 | 0.53 ± 0.01  | 0.64 ± 0.025 | 0.57 ± 0.02  |
| 865      | 0.245 ± 0.01  | 0.26 ± 0.01  | 0.40 ± 0.02  | 0.32 ± 0.01  |
| 1600     | 0.07 ± 0.01   | 0.085 ± 0.01 | 0.26 ± 0.02  | 0.18 ± 0.01  |
| 2200     | 0.04 ± 0.005  | 0.05 ± 0.005 | 0.165 ± 0.01 | 0.115 ± 0.01 |

<sup>a</sup>Average is performed over transect of nearly 80 km.



**Figure 6.** (a) Normalized aerosol radiance and (b) normalized aerosol polarized radiance in function of wavelength.

indicates an average AOT of  $0.18 \pm 0.05$  between 0900 and 1000 UT, which is in an excellent agreement with the MICROPOL AOT. Figure 7b shows that the effective radius remains rather constant. The average value derived along the transect, after rejection of cloud areas, is equal to  $0.43 \mu m$ . Small fluctuations of less than  $0.06 \mu m$  are observed. The retrieved Angström parameter (not shown), computed over the 865 and 670 nm [Deuzé et al., 2000], is close to  $0.6 \pm 0.2$ , while the Sun photometer at the seashore indicates a value of 0.2. This discrepancy can be explained by the fact that the Angström parameter is very sensitive to the relative contribution of mineral dust to the total optical thickness, especially when the Angström exponent is between 1.0 and 0.2 [Hamonou et al., 1999]. As the observations were performed on the edge of the dust plume, we can



**Figure 7.** (a) Aerosol optical thickness at 865 nm and (b) effective radii in micrometers retrieved by MICROPOL on 11 October 2001.

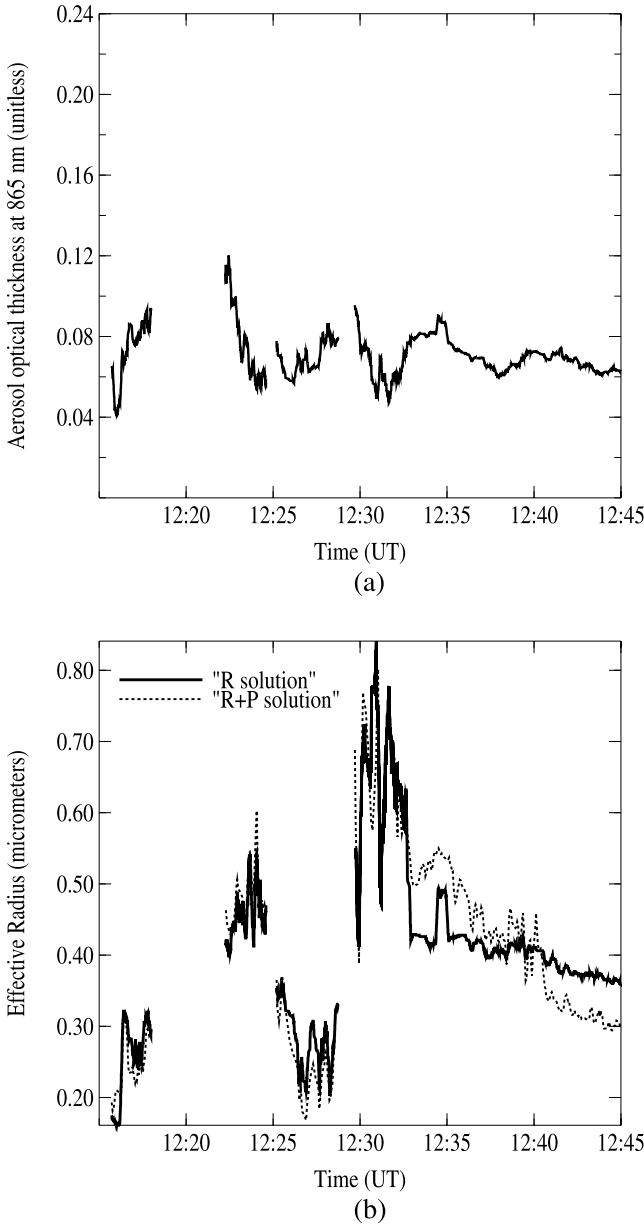
expect a strong variability in the relative contribution of the dust as it is shown by the measurements in Avignon. Indeed, the Angström exponent measured in Avignon shows a decrease from 1 to 0.2 during the day as the dust layer moves northward. The small mode concentration ( $\eta$ , not shown) varies from 35 to 50%. This suggests that large particles are rather predominant in the aerosol size distribution. The best fit in radiance is obtained for a mixture of models 4 and 5 (see Table 3). The model 6 also represents a possible solution but for less than 10% of the points. Corresponding residual errors for radiance as well as for polarization ( $\varepsilon_R$  and  $\varepsilon_{RP}$ ) are equal to 2.8% and 5%, respectively. The aerosol parameters derived using the “R + P” or the “R” solutions are exactly the same. This confirms that the models chosen by the algorithm are also suitable to represent the polarization induced by the aerosols.

This result tends to indicate that most of the particles in the air are spherical since the retrieved models 4 and 5 are spherical. The small aerosol particles have the property to generate more polarization than the larger spherical and nonspherical particles. If the major part of the particles observed in the dust plume were nonspherical, the polarized radiance generated by such particles would have been very low. This is not the case here because the solution chosen by the algorithm, which is a mixed of about 50% of small and large particles, is suitable to represent the polarization generated by the observed aerosols. This result confirms that the contribution of the small mode to the aerosol size distribution is as important as the contribution of the large mode. However, we cannot conclude that the mineral particles observed here follow a bimodal size distribution as we cannot neglect the possibility of a mixing with anthropogenic particles in the atmosphere.

[25] Figures 8a and 8b show the aerosol optical thickness at 865 nm and the effective radius retrieved by MICROPOL on 8 October. The missing parts in the plot correspond to small clouds detected by the lidar. Over the marine boundary layer where clouds have been identified by lidar (Figures 2b and 2c), the residual error goes over the 5% threshold (10%–15%). The AOT retrieved over the maritime aerosol layer is between 0.04 and 0.12. Effective radii decrease slightly from 0.42 to 0.36  $\mu\text{m}$  between 1233 and 1245 UT. This corresponds to an increase of the Angström parameter from 0.6 to 1.1. The residual fitting error in radiance is ranging from 2% to 1% from the beginning to the end of the transect. The corresponding fit in polarization,  $\varepsilon_{RP}$ , is about 8%. A mixture of about 50% of model 4 (see Table 3) and 50% of model 5 is found. The increase in the effective radius observed between 1230 and 1233 UT is associated to small values of  $\eta$  (down to 0.3) in association with the previous models. In agreement with the more pronounced spectral dependence observed in Figure 6a, the retrieved effective radius between 1215 and 1218 UT and between 1226 and 1229 UT are smaller. The effective radius ranges from 0.18 to 0.32  $\mu\text{m}$  and the Angström parameter is close to 1.2. A combination of models 2 or 3 associated with model 7 is retrieved with a relative concentration of about 70–75%. The “R + P” approach leads to the same optical thickness (difference less than 0.005), but the set of models and the effective radius are different for the region over-passed between 1233 and 1245 UT (Figure 8b). The decrease in effective radius along the transect is more pronounced than for the “R solution.” This decrease is due to a change in the retrieved models rather than in a change in the contribution of the small mode to the total optical thickness. A combination of models 4 and 7 is retrieved in the region between 1233 and 0240 UT, whereas models 3 and 6 are retrieved between 1240 and 1245 UT. The retrieved concentration ( $\eta$ ) is more stable than for the “R solution” over the transect of interest and remains close to 0.7. For these regions the residual error in polarization decreases to 6%, whereas the residual error in radiance is between 2.5 and 1.5%.

### 3.3. Comparison With MODIS Retrievals

[26] The TERRA/MODIS has performed observations over the same area at around 1030 UT on 11 October and at around 1000 UT on 8 October. The airborne measure-



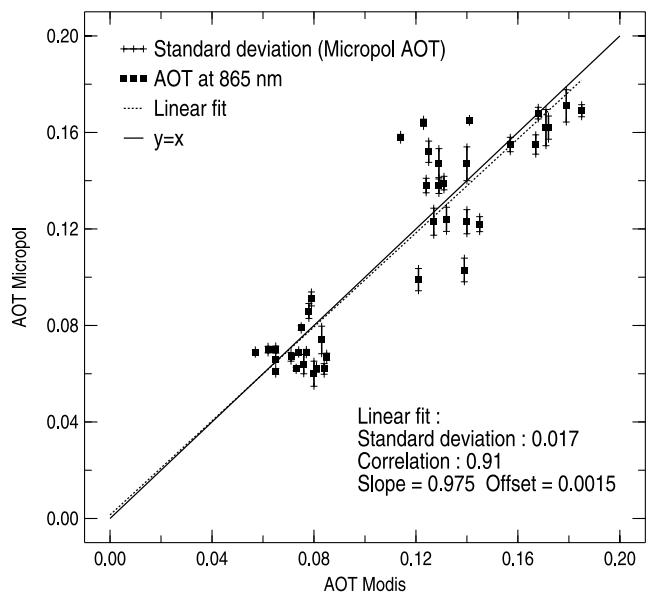
**Figure 8.** (a) Aerosol optical thickness at 865 nm and (b) effective radii in micrometers retrieved by MICROPOL on 8 October 2001.

ments were performed within 30 min after the satellite overpass on 11 October and more than 2 hours later on 8 October. The MODIS aerosol products are given at 10 km × 10 km resolution, while the size spot of MICROPOL is nearly 400 m depending on the aircraft altitude. In order to compare both retrievals, all the MICROPOL pixels located within the MODIS superpixel are selected to average the aerosol parameters. A superpixel corresponds to about 10 × 10 elementary MODIS pixels. The selection criteria is that the distance between the center of the MODIS pixel, and the MICROPOL pixel has to remain lower than 6 km. Figure 9 shows the comparison of the retrieved MICROPOL AOT (“R solution”) versus the MODIS one for the two considered days. The error bars on the MICROPOL AOT represent the variability within each MODIS pixel. The agreement be-

tween the two sensors is excellent. We have also compared the effective radius, asymmetry parameter at 865 nm, the Angström parameter computed over 670 and 865 nm, and the small mode concentration at 865 nm. We consider both the best solution, corresponding to the smallest residual fitting error, and the average MODIS solution [Tanré *et al.*, 1997; Remer *et al.*, 2002]. The comparison is reported in Table 5. We have also reported the numbers of the large and small aerosol models retrieved for the best solution, the residual error, and finally the scattering angle.

[27] On 11 October we can see a very good agreement in the effective radii retrieved by MODIS (best solution) and MICROPOL, equal to 0.48 and 0.45 μm, respectively. The MICROPOL retrieved asymmetry parameter is also in a good agreement with the MODIS one when considering the MODIS absolute accuracy ( $\pm 0.03$ ) for this parameter. There is a noticeable difference between the MODIS best and average solutions of the effective radius when the small mode concentration and the Angström exponent, for the average solution, compare much better to MICROPOL. The size of the small and the large modes is different in the MICROPOL and MODIS retrievals (see Table 5) as well as the contribution of the small mode to the optical thickness. However, the derived AOT and effective radii are similar. It indicates that the inversion is sensitive to the total optical thickness and the effective radius of the total size distribution, not to the size of the small and the large models.

[28] On 8 October large fluctuations can be observed in the retrieved size parameters: the average values of effective radius retrieved by MODIS for the best and the average solutions are twice as much as MICROPOL best solution. Depending on the part of transect, as already shown on Figure 8b, the MICROPOL effective radius exhibits a high variability, ranging from 0.2 to 0.8 μm, leading to an average value of 0.40 μm. The predominance of the coarse mode on the aerosol size distribution is clearly shown by both instruments. The contribution of the small mode to the total AOT is about the same in both retrievals. However, the



**Figure 9.** Comparison between the AOT retrieved by MODIS and MICROPOL at 865 nm.

**Table 5.** Comparison Between MICROPOL and MODIS Retrievals (Radiance Only Inversion)<sup>a</sup>

| Type of Solution         | 11 October 2001     |                       |                 | 8 October 2001      |                       |                   |
|--------------------------|---------------------|-----------------------|-----------------|---------------------|-----------------------|-------------------|
|                          | MICROPOL            | MODIS Best            | MODIS Average   | MICROPOL            | MODIS Best            | MODIS Average     |
| Effective radius         | $0.45 \pm 0.004$    | $0.48 \pm 0.003$      | $0.65 \pm 0.04$ | $0.40 \pm 0.09$     | $0.80 \pm 0.07$       | $0.79 \pm 0.05$   |
| Asymmetry parameter      | $0.71 \pm 0.0015$   | $0.69 \pm 0.007$      | $0.70 \pm 0.01$ | $0.69 \pm 0.03$     | $0.72 \pm 0.006$      | $0.715 \pm 0.003$ |
| Small mode concentration | $0.43 \pm 0.05$     | $0.36 \pm 0.07$       | $0.49 \pm 0.05$ | $0.57 \pm 0.13$     | $0.53 \pm 0.05$       | $0.52 \pm 0.05$   |
| Angström exponent        | $0.69 \pm 0.05$     | $0.42 \pm 0.10$       | $0.60 \pm 0.10$ | $0.6-1.2$           | $0.65 \pm 0.09$       | $0.63 \pm 0.10$   |
| Small model number       | 4                   | 1                     | -               | 4                   | 3 or 4                | -                 |
| Large model number       | 5                   | 6                     | -               | 5                   | 7                     | -                 |
| Residual fitting error   | $\approx 3\%$       | $2-4\%$               | -               | $1-2\%$             | $3.5-6.5\%$           | -                 |
| Scattering angle         | $\approx 126^\circ$ | $139^\circ-130^\circ$ | -               | $\approx 126^\circ$ | $139^\circ-130^\circ$ | -                 |

<sup>a</sup>The retrieved parameters are averaged on the respective aircraft leg displayed on Figures 1b and 2b. The variability of the retrieved parameter is reported in the table as a standard deviation (over the leg). Minimum and maximum residual fitting errors and scattering angles are also given.

retrieved coarse mode is different, leading to this difference in the effective radius as well as in the asymmetry parameter. MODIS residual fitting errors are slightly higher than on 11 October, ranging from 3.5 to 6.5%, and significantly higher than for MICROPOL.

### 3.4. Properties of the Vertical Structure

[29] The vertical distribution of aerosol extinction in the atmosphere results from production, sedimentation, accumulation, and mixing processes. The vertical profile of the clean marine boundary aerosol average concentration can be approximated by an exponential decay with the altitude. As sulfate and sea salt are hygroscopic, their radius, refractive index, and extinction properties will be affected by the relative humidity. Comparatively, one or several lofted layers in the free troposphere usually characterize dust transport [Hamonou et al., 1999, Léon et al., 2003]. A complex multilayer structure can reveal the contribution of different sources to the same plume, resulting in a difference in the dust size and optical properties. Pure dust particles are usually assumed to be nonhygroscopic. Moreover, owing to its desert origin, dust is transported in a dry air mass, thus minimizing humidity effects. However, the uptake of sulfate as a shell by the dust may modify their hygroscopic properties [Levin et al., 1996]. On 8 October, most of the aerosol signal comes from the marine boundary layer, while in the second case dust is observed up to 5 km high. The objective is here to derive from the lidar signal some information on the vertical distribution of aerosol properties by using MICROPOL retrievals.

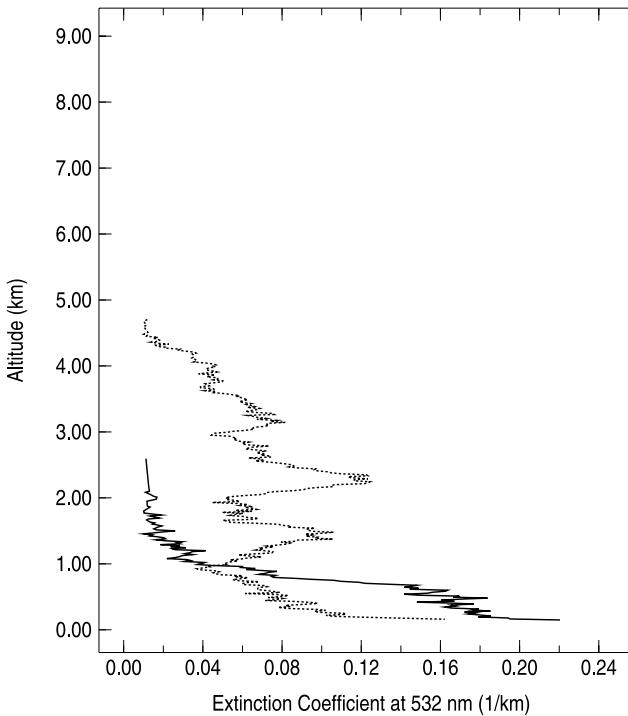
[30] Retrieving the extinction coefficient from nadir elastic backscatter lidar measurements requires the knowledge of the backscatter-to-extinction ratio, which depends on the particle type. The color ratio is not sufficient to constrain the restitution of the extinction profile from the lidar signal. The lidar inversion can be constrained by using columnar aerosol properties derived from passive radiometer measuring the top-of-the-atmosphere radiances. We have applied here a method proposed by Léon et al. [2003], which makes use of the total optical thickness and the effective radius retrieved by the MODIS to constrain the lidar inversion. As the two instruments are on the same airplane, the measurements are simultaneous in space and time. The aircraft is equipped with standard broadband radiometers to measure the upward and downward solar fluxes and to ensure clear conditions above the aircraft. During the measurements, there is no cloud or aerosol above the aircraft. The method relies on the use of the color ratio to determine the contribution of the small mode of particles to the total

aerosol extinction as a function of the altitude. The procedure does not allow retrieving the vertical profile of the size of the coarse mode and small mode independently, and we have to assume that the characteristics of each mode of particle do not change with altitude. Only the relative contribution of each mode can vary. In this case, there is a one-to-one relationship between the ratio of the backscatter coefficient between 532 and 1064 nm and the ratio of the small to the total extinction [Léon et al., 2003]. The retrieval scheme is an iterative procedure starting from the bottom of the atmosphere. The procedure follows: (1) evaluation of the atmospheric transmission using the aerosol optical thickness (in the first step the optical thickness derived from MICROPOL is used), (2) estimation of the relative contribution of the small mode to the total extinction from the ratio of the lidar backscatter coefficients corrected from the atmospheric transmission, (3) estimation of the backscatter-to-extinction ratio, and (4) estimation of the aerosol extinction coefficient. The 20 retrieved profiles of extinction and effective radius are vertically integrated and compared to the solutions retrieved by the passive sensor. We retain only the set of profiles for which both the columnar integrated aerosol optical thickness and the effective radius fall within the accuracy of the retrieval of this parameter by MICROPOL. The error in the retrieval due to signal detection and calibration of the lidar are discussed in the work of Léon et al. [2003]. For a relative calibration and signal detection error of 10% the vertical profile of aerosol extinction is retrieved within 20%.

[31] Figures 10 and 11 present the retrieved profiles of extinction and effective radius on 8 and 11 October. Figures 10 and 11 correspond to the average of lidar measurements performed between 1115 and 1120 UT on 11 October and between 1235 and 1240 UT on 8 October. The average extinction within the dust layer is about  $0.05-0.12 \text{ km}^{-1}$ . Aerosols are detected up to 3 and 6 km high in the maritime and dust profiles. The inversion procedure can give an estimate of the effective radius of the particles as a function of the altitude. Within the dust layer the effective radius is quasi-constant as a function of the altitude and equal to  $0.35 \mu\text{m}$ . In the profile derived on 8 October the effective radius increases at the top of the marine boundary layer, which is assumed to correspond to the condensation of water onto particles as seen from the PCR decrease.

## 4. Discussion and Conclusion

[32] Airborne lidar and passive radiometer have been used to investigate the two-dimensional structure and the



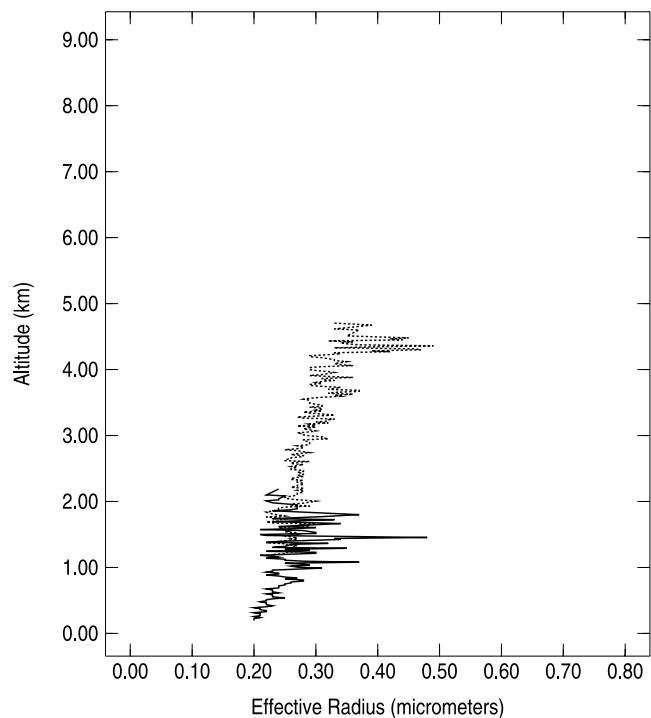
**Figure 10.** Extinction coefficient at 532 nm on (dashed line) 11 October and (solid line) 8 October.

optical properties of a Saharan dust layer as well as a maritime aerosol layer over the Mediterranean Sea. The vertical structure of the dust plume exhibits a high uniformity in the effective radius value, which is nearly constant and close to  $0.35\text{ }\mu\text{m}$ . We can also observe that the effective radius and the asymmetry parameter, derived from the aerosol models retrieved by MICROPOL, display small standard deviations over 500 km (French coast to Corsica Island), which indicates that the optical and physical properties associated to the dust layer are also rather constant horizontally. Indeed, the dust is expected to come from southern Algeria. However, we have not sampled the core of the dust event but only the edge of the plume. The analysis of the depolarization ratios confirms the presence of nonspherical particles in the dust layer. However, the depolarization coefficient was surprisingly low, about 4%, as compared to a previous study of the same plume. Indeed, Müller *et al.* [2003] have observed a depolarization coefficient varying from 10 to 25% during the overpass of the plume over Leipzig (Germany), between 13 and 14 October. It clearly indicates that the depolarization ratio may be a nonuniform parameter within a dust plume. The altitude of the top of the dust layer is 6 km and stays rather constant as the plume moves northward [Müller *et al.*, 2003]. The effective radius inferred from the synergy between the lidar and the MICROPOL is constant with the altitude, which confirms that we have observed a rather aged plume, where the largest particles have already been removed by sedimentation.

[33] The main observed difference between mineral dust and maritime aerosol as observed by a remote sensor is the optical thickness. Indeed, on 8 October, for the maritime observation, AOT is close to 0.1, whereas it is 0.3 in the case of the Saharan dust. In the maritime case the vertical

distribution revealed by the lidar shows that most of the aerosol extinction is confined in the marine boundary layer below 1 km. However, large particles are observed in the transition layer up to 2 km. An increase in effective radius from 0.2 to  $0.3\text{ }\mu\text{m}$  is observed between the 150 m and the upper part of the boundary marine layer. A high horizontally variability in the retrieved maritime aerosols parameters is also observed. As the observation is here performed over the emission area, it is expected to have only small-scale variability in the aerosol extinction due to local scale variation in the surface wind speed. As expected in the case of maritime particles (which are expected to be spherical), no significant depolarization was observed within the marine boundary layer.

[34] A comparison between MODIS and MICROPOL instruments has been performed. The inversion schemes are similar, except that MODIS uses six wavelengths ranging from 550 to 2135 nm against four for MICROPOL ranging from 670 to 2200 nm. The comparison of the aerosols products retrieved by MICROPOL and MODIS during the dust outbreak is very encouraging. The derived AOT and effective radius are consistent. On 8 October the comparison between MODIS and MICROPOL is more questionable. The AOT is significantly lower than on 11 October. The ability of the MODIS inversion to retrieve any information about the aerosol size distribution is directly related to the aerosol loading. At higher optical thickness the contribution of the aerosols to the signal is more important and the retrievals are generally more reliable [Remer *et al.*, 2002]. The low loading conditions observed here on 8 October and the high variability in the retrieved parameters are probably a source of uncertainty in the MODIS and MICROPOL retrievals and intercomparison. The difference in the acquisition time (up to 2 hours), and



**Figure 11.** Vertical profiles of effective radius on (dashed line) 11 October and (solid line) 8 October.

potential contamination of clouds, constitutes some other probable sources of errors in the comparison.

[35] The spectral polarized measurements acquired by MICROPOL have revealed a large disparity in the wavelength dependence of the polarized radiances generated by both types of aerosols. However, the polarized radiances generated by maritime and mineral dust aerosols are well simulated by our inversion and models. Considering that the nonspherical model represents the coarse mode of particles, the best solution on 11 October corresponds to a mixture of 50% of nonspherical model and water-soluble with humidity model (model 4; see Table 3). The optimal  $\varepsilon_R$  and  $\varepsilon_{RP}$  are 3.5% and 11%, respectively. It indicates that the proposed nonspherical model is not able to reproduce the scattering properties of the observed aerosols for the given geometry. This result is consistent with the weak observed lidar depolarization ratio. However, we need more observations on the mineral dust physical properties to generalize this finding and to understand the natural variability of the shape of the particles in the atmosphere.

[36] **Acknowledgments.** The authors would like to acknowledge the technical staff of laboratoire d'optique atmosphérique, namely J. Balois, C. Verwaerde and F. Auriol. The authors are grateful to the 2 pilots of the aircraft and to the technical staff of Institut National des Sciences de l'Univers (INSU) for their support on the aircraft and lidar. The authors are also grateful to F. Laveno and M. Verbrugge for providing ground-based measurements during the experiment. The development of the MICROPOL polarimeter is funded by the Centre national d'Etudes Spatiales (CNES) and the Conseil régional du Nord-pas de Calais.

## References

- Blanchard, D. C., and A. H. Woodcock (1980), The production, concentration and vertical distribution of the sea-salt aerosol, *Ann. N. Y. Acad. Sci.*, **338**, 330–347.
- Brogniez, G., F. Parol, L. Béchu, J. Pelon, O. Jourdan, J.-F. Gayet, F. Auriol, C. Verwaerde, J. B. Balois, and B. Damiri (2004), Determination of cirrus radiative parameters from synergy between active and passive remote sensing measurements during the FRENCH/DIRAC 2001: First results and comparison with in situ probes. Preparation to AQUA TRAIN experiment, *J. Atmos. Sci.*, **72**, 425–452, doi:10.1016/j.atmosres.2004.03.026.
- Chami, M., R. Santer, and E. Dilligard (2001), Radiative transfer model for the computation of radiance and polarization for the ocean-atmosphere system: Polarized properties of suspended matter for remote sensing, *Appl. Opt.*, **40**, 2398–2416.
- Cox, C., and W. Munk (1954), Statistic of the sea surface derived from Sun glint, *J. Mar. Res.*, **13**, 199–227.
- Deschamps, P. Y., F. M. Bréon, M. Leroy, A. Podaïre, A. Bricaud, J. C. Buriez, and G. Sèze (1994), The POLDER mission: Instrument characteristics and scientific objectives, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **32**, 598–615.
- Deuzé, J.-L., M. Herman, and R. Santer (1988), Fourier series expansion of the transfer equation in the atmosphere-ocean system, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **41**, 483–494.
- Deuzé, J.-L., C. Devaux, and M. Herman (1993), Analysis of the POLDER (Polarization and Directionality of Earth Reflectances) airborne instrument observations over land surfaces, *Remote Sens. Environ.*, **45**, 137–154.
- Deuzé, J. L., et al. (2000), Estimate of the aerosol properties over the ocean with POLDER, *J. Geophys. Res.*, **105**, 15,329–15,346.
- Dubovik, O., and M. D. King (2000), A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from Sun and sky radiance measurements, *J. Geophys. Res.*, **105**, 20,673–20,696.
- Flamant, C., V. Trouillet, P. Chazette, and J. Pelon (1998), Wind speed dependence of atmospheric boundary layer optical properties and ocean surface reflectance as observed by airborne backscatter LIDAR, *J. Geophys. Res.*, **103**, 25,137–25,158.
- Goloub, P., F. Waquet, J. L. Deuzé, M. Herman, F. Auriol, J. F. Léon, J. Y. Balois, C. Verwaerde, and D. Tanré (2003), Development of a multi-spectral polarimeter dedicated to aerosol characterization: Preliminary results, paper presented at 2003 IEEE International Geoscience and Remote Sensing Symposium 21–25 July 2003, Cent. de Cong. Pierre Baudis, Toulouse.
- Hamonou, E., P. Chazette, A. Papayannis, D. Balis, F. Marenco, V. Santacesaria, and G. Ancellet (1999), Characterization of the vertical structure of Saharan dust export to the Mediterranean basin, *J. Geophys. Res.*, **104**, 22,257–22,270.
- Herman, M., J.-L. Deuzé, C. Devaux, P. Goloub, F.-M. Bréon, and D. Tanré (1997a), Remote sensing of aerosols over land surfaces including polarization measurements and applications to POLDER measurements, *J. Geophys. Res.*, **102**, 17,039–17,049.
- Herman, J. R., P. K. Barthia, O. Torres, C. Hsu, C. Seftor, and E. Celarier (1997b), Global distribution of UV-absorbing aerosols from Nimbus7/TOMS data, *J. Geophys. Res.*, **102**, 16,911–16,922.
- Holben, N. B., et al. (1998), AERONET—A federated instrument network and data archive for aerosol characterisation, *Remote Sens. Environ.*, **66**, 1–16.
- Kaufman, Y. J., D. Tanré, and O. Boucher (2002), A satellite view of aerosols in the climate system, *Nature*, **419**, 215–223, doi:10.1038/nature01091.
- Kaufman, Y. J., D. Tanré, J.-F. Léon, and J. Pelon (2003a), Retrieval of profiles of fine and coarse aerosols using lidar and radiometric space measurements, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **41**, 1743–1754.
- Kaufman, Y. J., J. M. Haywood, P. V. Hobbs, W. Hart, R. Kleidman, and B. Schmid (2003b), Remote sensing of vertical distributions of smoke aerosol off the coast of Africa, *Geophys. Res. Lett.*, **30**(16), 1831, doi:10.1029/2003GL017068.
- Léon, J.-F., P. Chazette, and F. Dulac (1999), Retrieval and monitoring of aerosol optical thickness over an urban area by spaceborne and ground-based remote sensing, *Appl. Opt.*, **38**, 6918–6926.
- Léon, J. D., D. Tanré, J. Pelon, Y. J. Kaufman, J. M. Haywood, and B. Chatenet (2003), Profiling of a Saharan dust outbreak based on a synergy between active and passive remote sensing, *J. Geophys. Res.*, **108**(D18), 8575, doi:10.1029/2002JD002774.
- Leroy, M., J. L. Deuzé, F. M. Bréon, O. Hautecoeur, M. Herman, J. C. Buriez, D. Tanré, S. Bouffies, P. Chazette, and J. L. Roujean (1997), Retrieval of atmospheric properties and surface bi-directional reflectances over land from POLDER/ADEOS, *J. Geophys. Res.*, **102**, 17,023–17,037.
- Levin, Z., E. Ganor, and E. Gladstein (1996), The effect of desert particles coated with sulfate on rain formation in the eastern Mediterranean, *J. Appl. Meteorol.*, **35**, 1511–1523.
- Müller, D., U. Wandinger, and A. Ansmann (1999a), Microphysical particle parameters from extinction and backscatter LIDAR data by inversion with regularization: Theory, *Appl. Opt.*, **38**, 2346–2357.
- Müller, D., U. Wandinger, and A. Ansmann (1999b), Microphysical particle parameters from extinction and backscatter lidar data by inversion with regularization: Simulation, *Appl. Opt.*, **38**, 2358–2368.
- Müller, D., I. Mattis, U. Wandinger, A. Ansmann, D. Althausen, O. Dubovik, S. Eckhardt, and A. Stohl (2003), Saharan dust over a central European EARLINET-AERONET site: Combined observations with Raman lidar and Sun photometer, *J. Geophys. Res.*, **108**(D12), 4345, doi:10.1029/2002JD002918.
- Pelon, J., P. H. Flamant, and M. Meisonnier (1990), The French airborne backscatter lidar Leandre-1: Conception and operation, paper presented at 15th International Laser Radar Conference, Int. Coord., Gr. on Laser Atmos. Stud., Tomsk.
- Pelon, J., C. Flamant, P. Chazette, J.-F. Leon, D. Tanre, M. Sicard, and S. K. Satheesh (2002), Characterization of aerosol spatial distribution and optical properties over the Indian Ocean from airborne LIDAR and radiometry during INDOEX'99, *J. Geophys. Res.*, **107**(D19), 8029, doi:10.1029/2001JD000402.
- Prospero, J. M., P. Ginoux, O. Torres, S. E. Nicholson, and T. E. Gill (2002), Environmental characterization of global sources of atmospheric soil dust identified with the NIMBUS 7 Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) absorbing aerosol product, *Rev. Geophys.*, **40**(1), 1002, doi:10.1029/2000RG000095.
- Remer, L. A., et al. (2002), Validation of MODIS aerosol retrieval over ocean, *Geophys. Res. Lett.*, **29**(12), 8008, doi:10.1029/2001GL013204.
- Salomonson, V. V., W. L. Barnes, P. W. Maymon, H. E. Montgomery, and H. Ostrow (1989), MODIS: Advanced facility instrument for studies of the Earth as a system, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **27**, 145–153.
- Sassen, K., and Y. Takano (2000), Parry arc: A polarization lidar, ray tracing, and aircraft case study, *Appl. Opt.*, **39**, 6738–6745.
- Shettle, E. P., and R. W. Fenn (1979), Models for the aerosols of the lower atmosphere and the effects of humidity variation on their optical properties, *AFGL Rep. TR-79-0214*, Air Force Geophys. Lab., Bedford, Mass.
- Sicard, M., P. Chazette, J. Pelon, J. G. Wong, and S.-C. Yoon (2002), Variational method for the retrieval of the optical thickness and the backscatter coefficient from multiangle LIDAR profiles, *Appl. Opt.*, **41**, 493–502.

- Tanré, D., Y. J. Kaufman, and S. Matoo (1997), Remote sensing of aerosol properties over oceans using the MODIS/EOS spectral radiances, *J. Geophys. Res.*, **102**, 16,971–16,988.
- Volten, H., O. Muñoz, E. Rol, J. F. de Haan, W. Vassen, and J. W. Hovenier (2001), Scattering matrices of mineral aerosol particles at 41.6 nm and 632.8 nm, *J. Geophys. Res., Res.*, **106**, 17,375–17,401.
- Wang, M., and H. R. Gordon (1994), Radiance reflected from the ocean-atmosphere system: Synthesis from individual components of the aerosols size distribution, *Appl. Opt.*, **33**, 7088–7095.
- Winker, D., J. Pelon, and M. P. McCormick (2002), The CALIPSO mission: Aerosol and cloud observations from space, in *21th International Lidar Radar Conference*, pp. 735–738, Int. Coord. on Laser Atmos. Stud., Québec City, 8–10 July 2002.
- 
- J.-L. Deuzé, P. Goloub, J.-F. Léon, D. Tanré, and F. Waquet, Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Cité Scientifique, Université de Lille1, F-59655 Villeneuve d'Ascq, France. (leon@loa.univ-lille1.fr)
- J. Pelon, Service d'Aéronomie, CNRS, Université Pierre et Marie Curie, F-75252 Paris, France.

## Polarimetric remote sensing of aerosols over land

F. Waquet,<sup>1,2</sup> B. Cairns,<sup>3</sup> K. Knobelspiesse,<sup>1</sup> J. Chowdhary,<sup>1</sup> L. D. Travis,<sup>3</sup>  
B. Schmid,<sup>4</sup> and M. I. Mishchenko<sup>3</sup>

Received 17 June 2008; revised 13 September 2008; accepted 10 October 2008; published 9 January 2009.

[1] We present a new approach to retrieve the aerosol properties over land that uses accurate polarization measurements over a broad spectral (410–2250 nm) and angular ( $\pm 60^\circ$  from nadir) ranges. The approach uses longer wavelength observations to accurately estimate the surface effects, and it is incorporated into an optimal estimation framework for retrieving the particle number density and a detailed aerosol microphysical model: effective radius, variance, and complex refractive index. A sensitivity analysis shows that the uncertainties in aerosol optical thickness (AOT) increase with AOT while the uncertainties in the microphysical model decrease. The uncertainty in the single scattering albedo (SSA) is notably less than 0.05 by the time the AOT is greater than 0.2. We find that calibration is the major source of uncertainty and that perfect angular and spectral correlation of calibration errors reduces the uncertainties in retrieved quantities. Finally, we observe that shorter wavelength (<500 nm) observations are crucial for determining the aerosols vertical extent and imaginary refractive index from polarization measurements. The retrieval approach is tested under pristine and polluted conditions using observations made by the Research Scanning Polarimeter during the Aerosol Lidar Validation experiment and over California Southern wild fires. In both cases we find that the retrievals are within the combined uncertainties of the retrieval and the Aerosol Robotic Network Cimel products and Total Ozone Mapping Spectrometer Aerosol Index. This demonstrates the unique capability of polarization measurements to accurately retrieve AOTs under pristine conditions and provide estimation of the SSA at higher AOTs.

**Citation:** Waquet, F., B. Cairns, K. Knobelspiesse, J. Chowdhary, L. D. Travis, B. Schmid, and M. I. Mishchenko (2009), Polarimetric remote sensing of aerosols over land, *J. Geophys. Res.*, 114, D01206, doi:10.1029/2008JD010619.

### 1. Introduction

[2] Aerosols affect the climate of the Earth primarily by changing the amount of solar radiation that the Earth system absorbs. Indeed, aerosols can either reduce the amount of solar radiation that is absorbed by the Earth system, or even increase it [Haywood and Shine, 1995]. Their net radiative effect may therefore be to compensate for increases in greenhouse gases or to exacerbate their effects. The current and historical magnitude, and even the sign regionally, of this net radiative forcing by aerosols is uncertain because the size, composition and burden of aerosols is not very well known [Hansen *et al.*, 2005a; Chung and Seinfeld, 2005; Intergovernmental Panel on Climate Change, 2007] and also because aerosols can affect the formation and dissipation of clouds [Lohman and Feichter, 2005]. It is these facts, together with increasing concerns [Rosenzweig *et al.*, 2008] about the current and potential future

effects of greenhouse gases that has raised the level of importance of providing more accurate knowledge of the global distribution and microphysical properties of aerosols. The main purpose of obtaining such knowledge is so that the radiative forcing of the Earth can be defined with sufficient accuracy to evaluate model predictions of climate change against the observed state of the climate and secondarily to provide a detailed climatology of aerosols that can be used to evaluate and improve the chemical/aerosol transport models that are being used to make climate predictions [Ramanathan *et al.*, 2001; Mishchenko *et al.*, 2004; Hansen *et al.*, 2005b]. The only way to obtain this knowledge globally is using satellite based remote sensing and it is this topic that is the subject of this paper.

[3] Although lidar systems can make observations of aerosols with similar capabilities over both land and ocean and clearly provide the best approach to determining the vertical distribution of aerosols, those systems, and in particular space-borne ones, have a limited capability to determine the composition and size of aerosols, and this leads to substantial uncertainties in their estimates of the total burden of aerosols without some prior knowledge of aerosol type being available [Ackermann, 1998; Barnaba and Gobbi, 2004; Catrall *et al.*, 2005]. For passive remote sensing systems the problem of retrieving aerosols over oceans is substantially easier than over land. This is because

<sup>1</sup>Department of Applied Physics and Applied Mathematics, Columbia University, New York, New York, USA.

<sup>2</sup>Now at Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Université des Sciences et Technologies de Lille, Villeneuve-d'Ascq, France.

<sup>3</sup>NASA Goddard Institute for Space Studies, New York, New York, USA.

<sup>4</sup>Pacific Northwest National Laboratory, Richland, Washington, USA.

variations in the reflectance of the ocean can be reasonably well understood in terms of the variability of a single parameter, the chlorophyll concentration, which allows the aerosol properties and chlorophyll concentration to be retrieved simultaneously [Chowdhary *et al.*, 2006; Starnes *et al.*, 2003], or spectral bands can be used that are immune to variations in the chlorophyll concentration [Kaufman *et al.*, 1997a; Martonchik *et al.*, 1998; Kahn *et al.*, 2001]. The nature of the remote sensing problem over oceans is therefore quite well understood in terms of the required accuracy of the measurements [Mishchenko and Travis, 1997a; Mishchenko *et al.*, 2004], the importance of having a broad spectral range [Tanré *et al.*, 1996], the value of having multiangle measurements [Martonchik *et al.*, 2002] and the benefits of including polarization measurements [Mishchenko and Travis, 1997b; Cairns *et al.*, 1997; Deuzé *et al.*, 2001; Chowdhary *et al.*, 2001, 2002; Lebsack *et al.*, 2007].

[4] Over land the aerosol retrieval problem is somewhat more difficult because typical variations in time and space of the land surface reflectance are substantially larger than the reflectance caused by aerosols. However, the sources of aerosols generated by human activities are predominantly over land and it is also over land (and clouds) that aerosols can cause a net increase in the amount of solar radiation absorbed by the Earth system, because, if they are absorbing, they can make the Earth appear darker than is the case for an atmosphere in which there are no aerosols [Haywood and Shine, 1995]. The capability to use remote sensing methods to retrieve aerosol properties over land is therefore an important aspect of providing a better understanding of the radiative forcing caused by aerosols.

[5] The retrieval of aerosol properties over land was initially performed over dense dark vegetation for which the uncertainties in surface reflectance are the least and was restricted to an estimate of the aerosol optical thickness (AOT) [Kaufman *et al.*, 1997a; Zagolski *et al.*, 1999]. This approach was extended to a wider variety of surface types based on the empirical observation that the dependence of surface reflectance in the visible spectral domain is closely linked to that in the short-wave infrared (SWIR) for many surface types [Kaufman *et al.*, 1997b; Chu *et al.*, 2002], although the primary retrieved quantity is still the AOT with the aerosol microphysical model being prescribed regionally [Remer *et al.*, 2005]. An alternative method for determining aerosol properties over land is to use multiangle measurements where it can be assumed that the relative angular variation in the measurements has a negligible spectral dependence even as the absolute magnitude of the reflectance changes [Flowerdew and Haigh, 1995; Veeckind *et al.*, 1998; North, 2002]. High spatial resolution multiangle measurements over heterogeneous surfaces can also be used to separate the surface and atmospheric contributions to the radiances observed at the TOA [Martonchik *et al.*, 2002] even over bright deserts [Martonchik *et al.*, 2004]. The final radiance only method that has been used to retrieve AOT over land uses UV observations for which the land surface albedo is both dark and stable [Torres *et al.*, 1998]. The accuracy of these AOT retrievals as compared to ground-based sunphotometers is of order 20–30% at high optical depths [Remer *et al.*, 2005; Abdou *et al.*, 2005; North, 2002; Torres *et al.*, 2002] with the accuracy at lower optical depths being very dependent on the particular method and the

surface type. Moreover, these radiance-based methods provide very limited capability to determine the aerosol size and composition that is present, with discrepancies in the retrieved AOT and sunphotometer measured AOT frequently being ascribed to erroneous aerosol model assumptions [Chu *et al.*, 2002; Kahn *et al.*, 2005].

[6] In this paper we evaluate the use of polarization observations over land, that have a broad spectral (410–2250 nm) and angular ( $\pm 60^\circ$  from nadir) range, in order to retrieve not just the AOT, but also an aerosol model consisting of a size distribution and a complex refractive index. This allows most assumptions about the aerosol composition and size, required by other methods, to be eliminated thereby also reducing biases in the retrieved AOT. Previous authors [Deuzé *et al.*, 2001; Lebsack *et al.*, 2007] have performed analyses and developed retrieval approaches that are applicable to the polarized observations in two spectral bands at 670 and 865 nm provided by POLDER [Deschamps *et al.*, 1994]. The Research Scanning Polarimeter (RSP) aircraft instrument [Cairns *et al.*, 1999, Appendix A] and Aerosol Polarimetry Sensor (APS) planned for launch in 2009 as part of the NASA Glory mission [Mishchenko *et al.*, 2007] both provide polarized observations in seven spectral bands that are predominantly free of gaseous absorption at 412, 443 (469), 555, 672, 865, 1610 (1590) and 2250 nm (where parenthetic values refer to RSP bands that differ from APS). In section 2 we describe how this broad spectral range provides a substantially greater capability to characterize and eliminate the effects of the surface on the observed polarized radiance than is possible with the POLDER approach. This information is then incorporated into an application of the optimal estimation method (section 3) [Rodgers, 2000] that includes realistic instrument calibration and noise [Cairns *et al.*, 1999, Appendix B] to evaluate the sensitivity of the measurements to the various aerosol retrieval parameters (section 4) including the pressure level of the top of the aerosol layer. We also demonstrate the importance of short wavelength observations ( $\lambda < 555$  nm) in effectively constraining the complex refractive index of accumulation mode particles. In section 5 we apply the method to a set of field experiment observations performed with the RSP that provide a test of the realism of both the low and high aerosol optical depth regimes. In section 6 we summarize our results and present our conclusions regarding the capabilities of polarimetric remote sensing over land and what is required of a polarimetric sensor in order for these capabilities to be realized.

## 2. Modeling of the Measurements

### 2.1. Modeling of the Radiation Field

[7] The intensity and state of polarization of light can be described by the  $(4 \times 1)$  Stokes vector  $\mathbf{I}$  which has the four Stokes parameters  $I$ ,  $Q$ ,  $U$  and  $V$  as its components [Hansen and Travis, 1974]:

$$\mathbf{I} = (I, Q, U, V)^T, \quad (1)$$

where  $T$  indicates a transposed vector and the Stokes parameters are defined with respect to a certain plane of reference and have units of  $\text{W m}^{-2} \text{nm}^{-1}$  when being used to

define an irradiance and units of  $\text{W m}^{-2} \text{nm}^{-1} \text{sterad}^{-1}$  when defining a radiance. The parameter  $I$  describes the intensity of the radiation field,  $Q$  and  $U$  describe the magnitude and orientation of the linear polarization and  $V$  describes the helicity and magnitude of the circular polarization.

[8] Let  $\mathbf{I}_0$  denote a specific intensity vector of a unidirectional beam of sunlight illuminating a plane parallel atmosphere from the direction of  $(\theta_s, \varphi_s)$ .  $\theta_s$  and  $\varphi_s$  are respectively the solar zenith and azimuth angles. If the atmosphere is bounded below by a reflecting surface, the upward Stokes vector  $\mathbf{I}_u$  at the top of the atmosphere in the direction  $(\theta_v, \varphi_v)$  can be written as follows,

$$\pi \mathbf{I}_u(\lambda, \mu_s, \mu_v, \varphi_s - \varphi_v) = \mu_s \mathbf{R}^{\text{Atm+Surf}}(\lambda, \mu_s, \mu_v, \varphi_s - \varphi_v) \cdot \mathbf{I}_0(\lambda, \mu_s, \varphi_s), \quad (2)$$

where  $\lambda$  indicates the spectral dependence of the quantity.  $\mu_s$  and  $\mu_v$  are respectively the cosines of the solar and view zenith angles.  $\mathbf{R}^{\text{Atm+Surf}}$  is the  $(4 \times 4)$  reflection matrix of the surface-atmosphere system [Hansen and Travis, 1974]. The  $\mathbf{R}^{\text{Atm+Surf}}$  matrix describes all the scattering processes occurring in the surface-atmosphere system and can be expressed as a function of the reflection and transmission matrices of the atmosphere and the surface reflection matrix. These matrices can be computed for any given atmospheric and surface model using the vector adding/doubling method [De Haan et al., 1987]. Indeed, similar matrices can be calculated for the upwelling and down-welling radiation at any level in the atmosphere allowing the simulation of polarized radiation field for comparison with downward looking aircraft, or ground based upward looking observations.

[9] In order to calculate the multiple scattering properties of any atmosphere using the adding/doubling adding method it is necessary to specify the vertical distribution of scatterers and their scattering properties. We use the molecular optical thickness given by Hansen and Travis [1974] with a scale height of 8 km together with a spectrally invariant depolarization of 0.0279 [Bodhaine et al., 1999] to define the scattering properties and vertical distribution of Rayleigh scattering. We assume that the aerosol population can be described by a bimodal size distribution. Each mode (coarse and fine) is described by its own log-normal size distribution given by

$$N(r) = \frac{N_0}{\sqrt{2\pi}\sigma r} \exp\left[\frac{-(\ln r - \ln r_g)^2}{2\sigma^2}\right], \quad (3)$$

where  $r_g$  ( $\mu\text{m}$ ) is the geometric mean radius,  $\sigma$  is the variance and  $N_0$  ( $\mu\text{m}^{-2}$ ) is the column number density of particles. In the analysis of the retrieval of aerosols over land presented here the particles are considered to be spherical and so all that remains to define their optical properties is the complex refractive index  $m_r - im_i$  for each mode. The aerosol optical thickness,  $\tau$ , and the single scattering albedo,  $\omega_0$ , can then be defined in terms of the extinction,  $C_{\text{ext}}$  ( $\mu\text{m}^2$ ), and scattering,  $C_{\text{sca}}$  ( $\mu\text{m}^2$ ), cross-sections of the aerosols as

$$\begin{aligned} \tau &= N_0 C_{\text{ext}} \\ \omega_0 &= \frac{C_{\text{sca}}}{C_{\text{ext}}} \end{aligned} \quad (4)$$

[10] For the convenience of the reader we also note that the commonly used [Hansen and Travis, 1974] size distribution parameters of the effective radius,  $r_{\text{eff}}$ , and effective variance,  $v_{\text{eff}}$ , are related to the log normal size distribution parameters given in equation (3) by the formulae

$$\begin{aligned} r_{\text{eff}} &= r_g \exp\left(\frac{5}{2}\sigma^2\right) \\ v_{\text{eff}} &= \exp(\sigma^2) - 1 \end{aligned}, \quad (5)$$

provided the size distribution is not truncated [Mishchenko et al., 2002]. In the following, the suffixes  $f$  and  $c$  indicate parameters that respectively belong to the fine and coarse mode. When no specific vertical structure of the atmosphere is given, we consider that the aerosols are homogeneously distributed throughout the two lowest kilometers of the atmosphere.

## 2.2. Modeling of the Polarized Reflectance

[11] For naturally illuminated scenes the circular polarization is typically several orders of magnitude smaller than the linear polarization. Moreover, the state of linear polarization can be measured without the circular polarization having any significant effect, while the calculation of linear polarization is affected negligibly by neglecting the circular polarization and just using a  $3 \times 3$  approximation to the full  $4 \times 4$  reflection matrix. In the following, we therefore use the total and polarized reflectances,  $R$  and  $R_p$ , derived from the Stokes parameters  $I$ ,  $Q$  and  $U$ .  $R$  is given by

$$R = \pi I / \mu_s I_0, \quad (6)$$

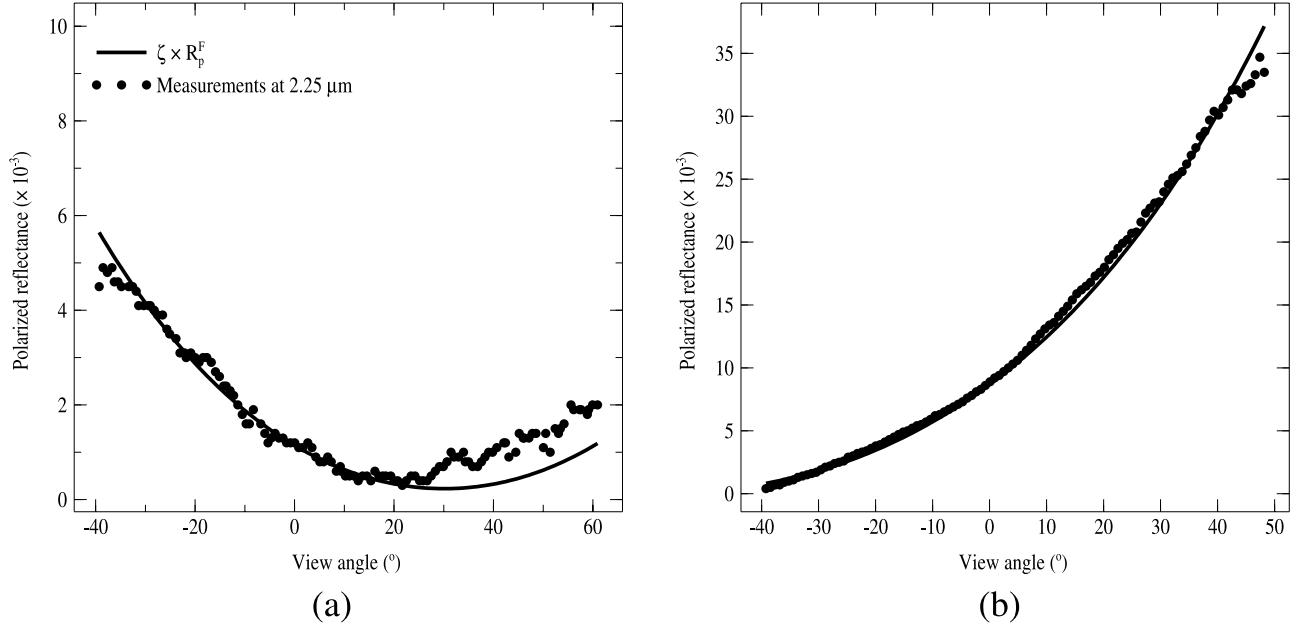
where  $I_0$  is the spectral solar extraterrestrial irradiance ( $\text{W m}^{-2} \text{nm}^{-1}$ ).  $R_p$  is given by

$$R_p = -\pi Q / \mu_s I_0. \quad (7)$$

$Q$  is the second Stokes parameter defined with respect to the scattering plane (the plane which contains both solar and view directions). The parameter  $Q$  is here sufficient to describe the linear polarization since  $U$  becomes negligible when the Stokes parameters are defined with respect to the plane of scattering and when the polarized surface reflectance is similar to that caused by Fresnel reflection [Bréon et al., 1995], as discussed in the following. The sign convention used here is that the polarized reflectance is positive (negative) when the direction of polarization is perpendicular (parallel) to the normal to the scattering plane.

### 2.2.1. Surface Level

[12] Different experimental studies have shown that the surface polarization is mainly generated by single reflection at surface facets (e.g., leaves cuticles, grains of soil). If this is the case, the surface polarized reflectance depends on (1) the Fresnel law (i.e., surface refractive index and reflection angle), (2) the surface physical and geometrical properties (e.g., roughness, shadowing, inclination of the leaves etc.), and (3) the viewing geometry. Figure 1 shows an example of polarized reflectances measured at  $2.25 \mu\text{m}$  over a vegetated surface and a bare soil in the Southern Great Plains together with the Fresnel reflectance for those viewing geometries scaled by a coefficient that does not depend on illumination or viewing geometry. The measure-



**Figure 1.** Polarized reflectance measured at 2.25  $\mu\text{m}$  over (a) a vegetated surface and (b) a bare soil (dots). Polarized reflectance generated by the Fresnel reflection (solid line) scaled by a coefficient. Viewing geometry for (a)  $\varphi_s - \varphi_v = 45^\circ$  and  $\theta_s = 60^\circ$  and (b)  $\varphi_s - \varphi_v = 0^\circ$  and  $\theta_s = 30^\circ$ .

ments for each surface type were performed for different illumination angles ( $\theta_s$ ,  $\varphi_s$ ) and for a different viewing plane ( $\varphi_v$ ). The effect of the atmosphere is small here with the aerosol optical depth at 2130 nm, as measured by the AATS-14, being 0.05 or less and the measurements can therefore be regarded as being dominated by the direct surface contribution. The polarized reflectances are modeled as follows,

$$R_p^{\text{Surf}}(\mu_s, \mu_v, \varphi_s - \varphi_v) = \zeta R_p^F(\gamma). \quad (8)$$

$R_p^F$  is the Fresnel coefficient for polarized light calculated for a surface refractive index of 1.5 that is a value commonly accepted for natural surfaces.  $\gamma$  is the reflection angle that can be expressed as a function of the scattering angle,  $\Theta$ , by  $\gamma = (\pi - \Theta)/2$  with  $\zeta$  being a coefficient that provides the best fit to the measurements at 2.25  $\mu\text{m}$ .

[13] The coefficient  $\zeta$  accounts for the intrinsic properties of the surface. In particular, it accounts for the actual surface refractive index being different from that assumed in the model since the polarized reflectance calculated with one refractive index is proportional to a good degree of approximation to that with a different one (this is one of the properties of the Fresnel polarized reflectance). Figure 1 shows that the functional variation of the surface polarization with the viewing and illumination angles can be robustly modeled by only considering the Fresnel reflection, whether the surface is a bare soil or vegetation. Assuming that the azimuth behavior of the surface polarization only depends on the Fresnel law, this model estimated in the plane of observations can be used to predict the surface polarization for any other viewing plane. Such an assumption has been commonly made for the development of surface polarization models [Bréon et al., 1995; Nadal and Bréon, 1999] and is also made here. In the following,

we improve this simple model by adjusting the  $\zeta$  factor for each view angle.

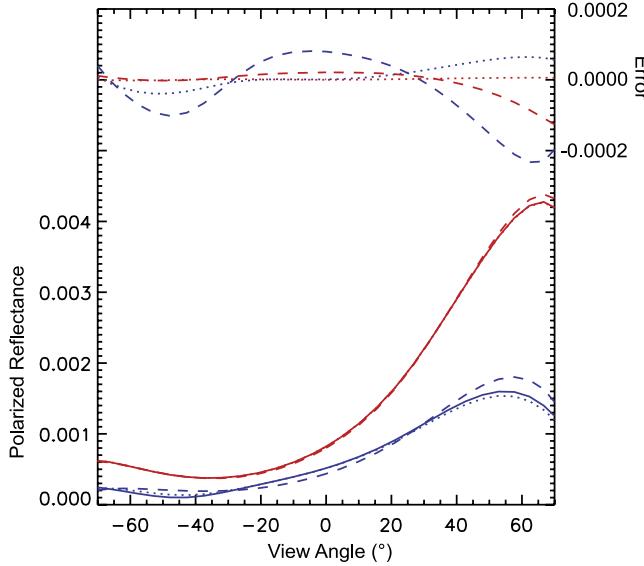
[14] Another unusual feature of the surface polarized reflectance is its lack of color. This is theoretically justified by the fact that the real component of the refractive indices of many rocks and the waxes that cover vegetation show a rather flat spectral behavior [Pollack et al., 1973]. Laboratory measurements of the polarized reflectance of a variety of leaves at the Brewster angle also show very weak spectral variation across the visible spectrum from 400 to 900 nm [Grant et al., 1993]. The lack of spectral variation of polarized reflectance has also been born out by airborne measurements over a wide spectral range from the short visible to the middle infrared spectra and for various surface types (e.g., forest, crops, bare soil) [Cairns et al., 2001; Elias et al., 2004; Waquet et al., 2007]. As the effect of the atmosphere is typically very small in the middle-infrared, the model previously defined can be estimated using middle-infrared measurements and then applied to modeling the surface polarization in all spectral bands across the solar spectrum.

## 2.2.2. Instrument Level

[15] In order to describe the main processes that generate the up-welling polarized reflectance, we provide in equation (9) an approximate expression for the surface-atmosphere reflection matrix viz.,

$$\mathbf{R}^{\text{Atm+Surf}} = \mathbf{R}^{\text{Atm}} + t_+ \mathbf{R}^{\text{Surf}} t_- + [\mathbf{T}_+^d \mathbf{R}^{\text{Surf}} t_- + t_+ \mathbf{R}^{\text{Surf}} \mathbf{T}_-^d + \mathbf{T}_+^d \mathbf{R}^{\text{Surf}} \mathbf{T}_-^d], \quad (9)$$

in which we have suppressed the dependence of the matrices on the viewing geometry ( $\mu_s$ ,  $\mu_v$ ,  $\varphi_s - \varphi_v$ ) and wavelength for the sake of clarity. The minus (plus) subscripts refers to a downward (upward) direction.  $\mathbf{R}^{\text{Atm}}$  and  $\mathbf{R}^{\text{Surf}}$  are respectively the atmospheric and surface



**Figure 2.** Contribution of the surface polarized reflectance (blue lines) to the TOA polarized reflectance (red lines). Exact calculations (solid lines), calculations without multiple scattering interactions between surface and atmosphere (dotted lines) and calculations performed using direct transmission term and scaling optical thicknesses (dashed lines). The errors on the surface and TOA polarized reflectances are shown in more detail at the top of the figure. Aerosol layer:  $r_{\text{eff}}^{\text{s}} = 0.14$ ,  $v_{\text{eff}}^{\text{s}} = 0.15$ ,  $r_{\text{eff}}^{\text{l}} = 2.5$ ,  $v_{\text{eff}}^{\text{l}} = 0.5$ ,  $m_r^{\text{s}} = m_r^{\text{l}} = 1.4$ , and  $\tau_a = 0.1$  at 550 nm. Calculations made for a solar zenith angle of 45°,  $\varphi_s - \varphi_v = 45^\circ$  and at a wavelength of 0.55 μm.

reflection matrices.  $\mathbf{T}^{\text{d}}$  corresponds to the diffuse transmission matrix of the atmosphere and  $t$  is a direct transmission term given by

$$t_{-,+} = \exp \left[ - \left( \frac{\tau_{a,\lambda} + \tau_{r,\lambda}}{\mu_{s,v}} \right) \right], \quad (10)$$

where  $\tau_a$  and  $\tau_r$  are respectively the aerosol and molecular total optical thicknesses.

[16] Equation (9) is arranged in order to separate the terms that contribute to the observed reflectance into three distinct components. The first term  $\mathbf{R}^{\text{Atm}}$  describes the contribution of the upwelling light scattered from the atmosphere without interactions with the surface. The second term describes the surface contribution transmitted directly through the atmosphere while the third term, between brackets, models the diffuse interactions between the surface and the atmosphere. An exact expression for  $\mathbf{R}^{\text{Atm+Surf}}$  would require the inclusion of multiple surface reflections (i.e., multiple scattering interactions between surface and atmosphere).

[17] Figure 2 shows an example of polarized reflectances calculated at the surface and TOA levels (solid lines) and the same quantities calculated when suppressing the process of multiple surface reflections (dots). It is apparent that the contribution of multiple surface-atmosphere interactions to the observed polarization is small at the surface and, since it

is attenuated by the atmosphere, is negligibly small at the top of the atmosphere. Note that this process is generally accounted for in our adding-doubling calculations but can, if necessary, be neglected and the surface-atmosphere interaction for polarization can be treated using equation (9) rather than a full adding calculation.

[18] The polarized reflectances measured over land are usually modeled by considering only the up-welling polarized light scattering from the atmosphere and a single reflection off the surface [Deuzé et al., 2001; Waquet et al., 2007]. The polarized reflectance can then be written in the following form,

$$\begin{aligned} R_{p,\lambda}^{\text{calc}}(\mu_s, \mu_v, \varphi_s - \varphi_v) &= R_{p,\lambda}^{\text{atm}}(\mu_s, \mu_v, \varphi_s - \varphi_v) \\ &+ t_{-+}^* R_p^{\text{surf}}(\mu_s, \mu_v, \varphi_s - \varphi_v) t_{-+}^*. \end{aligned} \quad (11)$$

In this equation  $R_p^{\text{atm}}$  is the atmospheric polarized reflectance (i.e., calculation made with a black surface) and  $R_p^{\text{surf}}$  is the surface polarized reflectance.  $t_{-+}^*$  is a direct transmission term where the aerosol and molecular optical thicknesses are both scaled by a factor.

[19] These factors are empirically derived and account for the neglect of the diffuse surface-atmosphere interactions. In Figure 2, we show the result of this modeling at the TOA and surface levels (dashed lines). The coefficients used to scale the molecular and aerosol optical thicknesses are respectively equal to 0.63 and 0.44. These factors are tuned here to give the best results for the particular aerosol model and load over the full range of solar zenith and azimuth angles. Although this approach is optimized here, it introduces some significant errors in the modeling of the surface contribution, resulting in errors in the TOA polarized reflectance that are as large as 0.0001 (2.5% of the signal).

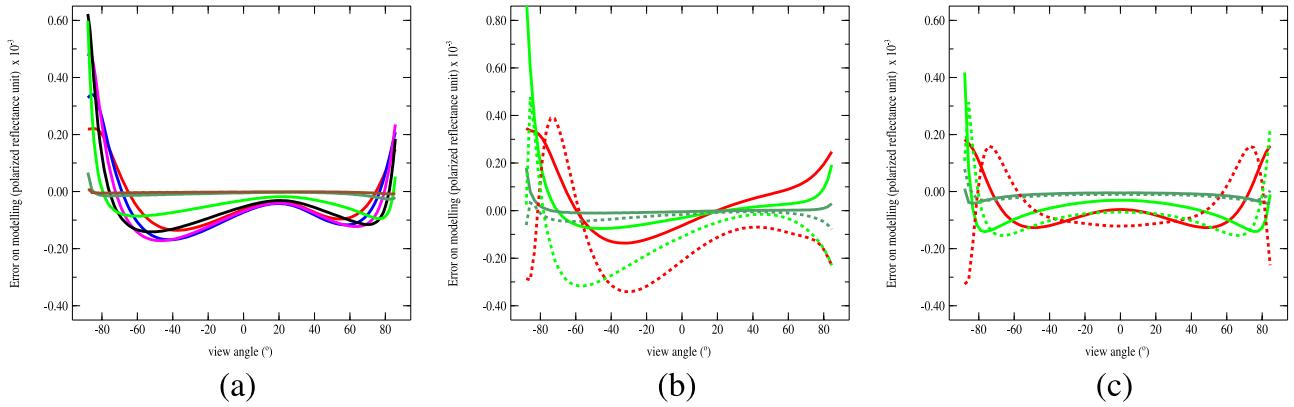
[20] The simple surface model introduced in equation (8) can be easily used as the surface reflection matrix to accurately calculate the diffuse interactions between the surface and the atmosphere. We propose a slightly different approach to model the polarized reflectances measured over land by the airborne RSP that is convenient for remote sensing applications. For a given viewing geometry, we calculate the surface contribution by considering only the Fresnel reflection and we multiply this quantity by a coefficient to scale the surface to the measured one. In practice, we calculate the polarized reflectance as follows,

$$R_{p,\lambda}^{\text{Calc}} = R_{p,\lambda}^{\text{Atm}} + \left[ R_{p,\lambda,Fresnel-surface}^{\text{Atm+Surf}} - R_{p,\lambda}^{\text{Atm}} \right] \xi. \quad (12)$$

[21] The dependence of the quantities on viewing geometry ( $\mu_s, \mu_v, \varphi_s - \varphi_v$ ) is once again suppressed for clarity.  $R_{p,\lambda,Fresnel-surface}^{\text{Atm+Surf}}$  is the polarized reflectance calculated when the elements of the reflection matrix are calculated according to the Fresnel law using a surface refractive index equal to 1.5. The term in brackets corresponds to the surface contribution (see equation (9)).  $\xi$  is given by

$$\xi(\mu_s, \mu_v, \varphi_s - \varphi_v) = R_{p,2.25\mu\text{m}^{\text{Meas}}}(\mu_s, \mu_v, \varphi_s - \varphi_v) / R_p^F(\gamma), \quad (13)$$

where  $R_{p,2.25\mu\text{m}^{\text{Meas}}}$  is the polarized reflectance measured at 2.25 μm.



**Figure 3.** Errors in the modeling of the polarized reflectance shown as a function of the viewing geometry and wavelength. Calculations performed using a scaled surface reflection matrix (solid lines) or using direct transmission terms with scaling optical thicknesses (dashed lines). (a) Calculations performed in the principal plane at 0.41, 0.47, 0.55, 0.67, 0.865, 1.6, and 2.25  $\mu\text{m}$  respectively in red, blue, magenta, black, green, forest, and brown. Calculations made at 0.41, 0.865, and 1.6  $\mu\text{m}$  (b)  $45^\circ$  from the principal plane and (c) perpendicular to the principal plane.  $\theta_s = 45^\circ$ ,  $m_r = 1.40 + 0.01i$ ,  $r_{\text{eff}} = 0.2 \mu\text{m}$ ,  $v_{\text{eff}} = 0.15$ .  $\tau^{0.55} = 0.1$ .

[22] In equation (13), the scaling factor is derived for each view angle and allows for the fact that not all view angles see exactly the same surface as a result of aircraft attitude variations. As all the spectral polarization measurements are simultaneously acquired in each view by RSP, this modeling allows the surface contribution to be eliminated from the measurements even when different parts of the scan view different surfaces. We do note however that if a single surface type was being viewed by a remote sensing instrument, such that  $\xi$  takes a single value, or another simple parametric model of the surface can be used [Nadal and Bréon, 1999], then the surface model parameters should be included in the retrieval vector. The polarization generated by the Fresnel reflection (i.e.,  $R_p^F$ ) progressively decreases with the scattering angle and becomes null in the backscattering direction ( $\Theta = 180^\circ$ ). We therefore restrict this approach to scattering angles smaller than  $160^\circ$  in order to prevent the division by small or null values of  $R_p^F$  in equation (13).

### 2.3. Accuracy of the Modeling

[23] In this section, we evaluate the accuracy of our modeling of the polarized reflectances measured over land. We generate synthetic measurements using a surface polarization model representative of a vegetation canopy [Bréon *et al.*, 1995]. The surface polarized reflectance is given by

$$R_p^{\text{Surf}}(\mu_s, \mu_v, \varphi_s - \varphi_v) = \frac{1}{4(\mu_v + \mu_s)} R_p^F(\gamma), \quad (14)$$

where  $R_p^F$  is calculated with a surface refractive index of 1.4 instead of 1.5.

[24] We compare these exact simulations to the polarized reflectances calculated following our approach using equation (12) and the one based on the use of direct transmission terms with scaling optical thicknesses (equation (11)). Practically the model of equation (14) is used to estimate the surface polarized reflectance in equation (11)

and to replace the polarized reflectance measured at  $2.25 \mu\text{m}$  in equation (13). We assume here that the surface is known (i.e., well characterized using the  $2.25 \mu\text{m}$  channel) in which case the errors presented in the following are directly applicable to understanding those made when modeling the actual diffuse surface-atmosphere interactions. The only caveats regarding this evaluation of the potential magnitude of modeling errors are that we are assuming that the actual surface polarization properties are not significantly more divergent from our assumed model than the simple vegetation model used here and that equation (13) is an acceptable method for dealing with surface heterogeneity. The only domain for which the modeling errors may be larger is over the scattering angle range ( $160$ – $180^\circ$ ) that we are excluding from use. Figure 3a shows an example of the errors obtained using our modeling as a function of the viewing angles. Calculations are performed for a fine mode particle model and an aerosol optical thickness of 0.1 at  $0.55 \mu\text{m}$ , in the principal plane, and for each RSP band.

[25] We observe in Figure 3a that the errors are negligible in the middle-infrared bands and increase as the wavelength decreases with the errors becoming critical for view angles larger than  $60^\circ$  where the model that we assumed and the test model are most different. The importance of the surface-atmosphere interactions mainly depends on the scattering processes that occur in the atmosphere, which increase with the optical thicknesses. This explains why the errors become larger for large view angles and roughly increase with decreasing wavelength. However, these interactions also depend on the amount of light that reaches the surface (i.e., illumination), which decreases with increasing optical thicknesses. The errors are therefore not necessarily maximal at  $0.41 \mu\text{m}$  (see red line in Figure 3a) since there is a balance between the creation of errors by scattering between the surface and atmosphere and suppression of those errors by extinction.

[26] Figures 3b and 3c show a comparison between our approach (solid lines) and the one based on the use of direct

**Table 1.** A Priori Knowledge of the Aerosol Parameters and Associated Uncertainties

|             | $r_g$ ( $\mu\text{m}$ ) | $\sigma$  | $m_r$       | $M_i$         |
|-------------|-------------------------|-----------|-------------|---------------|
| Fine mode   | 0.15 (0.1)              | 0.4 (0.1) | 1.47 (0.14) | 0.01 (0.015)  |
| Coarse mode | 0.8 (0.2)               | 0.6 (0.3) | 1.53 (0.05) | 0.005 (0.005) |

transmission terms and scaling optical thicknesses (dashed lines) for two other viewing angle planes at 0.41, 0.865 and 1.6  $\mu\text{m}$ . The scaling factors are tuned to give the best results for each viewing geometry and wavelength. For instance, the factors derived at 0.41  $\mu\text{m}$  for the molecules and aerosols are respectively equal to 0.48 and 0.71, perpendicular to the principal plane, whereas these factors are equal to 0.68 and 0.81, at 45° from the principal plane. In the original parameterization, the same pair of coefficients is used independently of the wavelength and viewing geometry, which would lead to an increase in the observed errors. Our approach is in general two times more accurate and does not require tuning for different viewing geometries. We performed calculations for various viewing geometries ( $-60^\circ < \theta_v < 60^\circ$ ,  $0^\circ < \varphi_s - \varphi_v < 90^\circ$ ,  $30^\circ < \theta_s < 60^\circ$ ) and aerosol models ( $r_{\text{eff}}^f = 0.15 \mu\text{m}$ ,  $v_{\text{eff}}^f = 0.17$ ,  $r_{\text{eff}}^c = 1.97 \mu\text{m}$ ,  $v_{\text{eff}}^c = 0.43$ ,  $m = 1.47 - 0.01i$  and  $0 < \tau^{0.55} < 1.5$ ) and found that the maximal error does not exceed  $2.5 \times 10^{-4}$  in any RSP band. This analysis shows that our modeling allows us to accurately simulate the diffuse atmosphere-surface interactions over a wide spectral range (0.41–2.25  $\mu\text{m}$ ). Based on this analysis, we now investigate the capability of the multispectral, multiangular polarized measurements of RSP to retrieve aerosol properties over land.

### 3. Algorithm

[27] Our retrieval approach is based on the use of an optimal estimation method. The principle of an optimal estimate is to determine the most probable atmospheric state conditional on the value of the measurements and some a priori knowledge of this medium [Rodgers, 2000]. The determination of the most probable atmospheric state is identical to the minimization of a cost function  $\Phi$  that accounts for these different quantities:

$$\Phi = (\mathbf{Y} - \mathbf{F})^T \mathbf{C}_T^{-1} (\mathbf{Y} - \mathbf{F}) + (\mathbf{X} - \mathbf{X}_a)^T \mathbf{C}_a^{-1} (\mathbf{X} - \mathbf{X}_a), \quad (15)$$

where  $\mathbf{Y}$  is the measurement vector,  $\mathbf{F}$  is the simulation vector,  $\mathbf{C}_T^{-1}$  is the total error covariance matrix,  $\mathbf{X}$  is the atmospheric state vector,  $\mathbf{X}_a$  is the a priori atmospheric state vector and  $\mathbf{C}_a^{-1}$  is the a priori error covariance matrix.

[28] The first term in equation (15) corresponds to a weighted least squares error term that measures the distance between the measured polarized reflectances and the modeled polarized reflectances. We use the first six spectral bands of the RSP instrument that are in atmospheric windows: 0.41, 0.47, 0.55, 0.67, 0.87 and 1.6  $\mu\text{m}$  to constrain the aerosol properties. The total error covariance matrix accounts for the measurement errors and some potential modeling errors and it is discussed in the sensitivity study in section 4.1.

[29] The second term in equation (15) is a penalty function that constrains the solution to lie near the a priori state where the “near” is quantified by the a priori error

covariance matrix. The state vector  $X$  contains the aerosol parameters that allow characterizing each mode separately:  $N^f$ ,  $r_g^f$ ,  $\sigma^f$ ,  $m_r^f$ ,  $N^c$ ,  $r_g^c$ ,  $\sigma^c$ ,  $m_r^c$ ,  $m_i^c$  and  $P$ , the pressure level that corresponds to the height where the top of the aerosol layer is located. The a priori knowledge of the aerosol parameters is based on the aerosol climatology of *Dubovik et al.* [2002]. In Table 1, we provide the values of the a priori aerosol parameters (i.e., vector  $\mathbf{X}_a$ ) and the associated uncertainties (standard deviation). The covariance matrix  $\mathbf{C}_a$  is assumed diagonal where the diagonal elements correspond to the square of the standard deviation values given in Table 1. The a priori values for  $N^f$  and  $N^c$  are derived using a Look-Up-Table (LUT) approach, as explained in the following.

[30] The determination of the best solution  $\mathbf{X}$  that minimizes the cost function requires the resolution of a nonlinear equation. Nonlinear systems are usually solved using the Newton-Gauss iteration procedure. In practice, the Newton Gauss procedure may not converge and need to be modified. The most widely used modification is known as the Levenberg-Marquadt method, which is implemented by the following equation:

$$\mathbf{X}^{i+1} = \mathbf{X}^i - [\mathbf{H}(\mathbf{X}^i) + \gamma \cdot \mathbf{I}]^{-1} \cdot \nabla_x \Phi(\mathbf{X}^i), \quad (16)$$

where  $\mathbf{I}$  is the identity matrix with the dimensionality of the state vector,  $i$  indicates the number of iteration and  $\gamma$  is a positive coefficient that aids in the convergence of the iteration.  $\mathbf{H}$  is known as the Hessian matrix,

$$\mathbf{H}(\mathbf{X}_i) = \nabla_x^2 \Phi(\mathbf{X}_i) \approx \mathbf{C}_a^{-1} + \mathbf{K}_i^T \cdot \mathbf{C}_T^{-1} \cdot \mathbf{K}_i, \quad (17)$$

where

$$\mathbf{K}_i = \frac{\partial \mathbf{F}(\mathbf{X})}{\partial \mathbf{X}_i}. \quad (18)$$

[31]  $\mathbf{K}$  is the Jacobian matrix, which represents the sensitivity of the forward model to the retrieved quantity (i.e., sensitivity of the polarized reflectances to the aerosol parameters).

[32] The criteria for changing the  $\gamma$  value is dependent on the convergence behavior. If  $\Phi(\mathbf{X}_{i+1}) > \Phi(\mathbf{X}_i)$  then we reject the solution  $\mathbf{X}_{i+1}$  and we increase  $\gamma$  whereas if  $\Phi(\mathbf{X}_{i+1}) < \Phi(\mathbf{X}_i)$  then we accept the solution  $\mathbf{X}_{i+1}$  and we decrease  $\gamma$ . For larger  $\gamma$  values the steepest descent dominates and the convergence is slow (i.e., small step size) but robust whereas for smaller  $\gamma$  values, the search turns to the faster Newtonian descent. The iteration process is stopped when there is no change of the cost function between two successive iteration steps.

[33] The optimal estimate method also provides an error diagnostic of the retrieved parameters. The Hessian matrix obtained at the final step of iteration can be used to calculate the retrieval error covariance matrix  $\mathbf{C}_x$ :

$$\mathbf{C}_x = (\mathbf{C}_a^{-1} + \mathbf{K}_i^T \cdot \mathbf{C}_T^{-1} \cdot \mathbf{K}_i)^{-1}. \quad (19)$$

The square roots of the diagonal elements of  $\mathbf{C}_x$  allow obtaining the standard deviation associated with each retrieved parameter. The aerosol microphysical parameters

**Table 2.** Properties of the Fine and Coarse Modes Particles Used for the Calculations<sup>a</sup>

| Parameters  | $r_g$ ( $\mu\text{m}$ ) | $r_{eff}$ ( $\mu\text{m}$ ) | $\sigma$ | $v_{eff}$ | $m_r$                                  | $m_i$                                     | $\omega_0$                            |
|-------------|-------------------------|-----------------------------|----------|-----------|--|---|---------------------------------------|
| Fine mode   | 0.1                     | 0.149                       | 0.4      | 0.175     | 1.44, 1.43, 1.43,<br>1.43, 1.425, 1.40 | 0.008, 0.009, 0.01,<br>0.011, 0.012, 0.02 | 0.95, 0.95, 0.93, 0.91,<br>0.88, 0.56 |
| Coarse mode | 0.8                     | 1.965                       | 0.6      | 0.43      | 1.53                                   | 0.005                                     | 0.80, 0.82, 0.84, 0.86,<br>0.88, 0.93 |

<sup>a</sup>The complex refractive index  $m_r + im_i$  and single scattering albedo are reported at 0.41, 0.47, 0.55, 0.67, 0.87, and 1.6  $\mu\text{m}$ .

contained in the vector  $\mathbf{X}$  and the error retrieval covariance matrix  $C_x$  can be also used to calculate the standard deviation associated with any other aerosol parameter that depends on the elements of  $\mathbf{X}$ . For the aerosol optical thickness, the standard deviation is given by:

$$\sigma_\tau = \sqrt{\left( \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N C_{x,i,j} \frac{\partial \tau}{\partial X_i} \frac{\partial \tau}{\partial X_j} \right)}. \quad (20)$$

[34] A similar formula applies to the single scattering albedo.

[35] A first guess of the aerosol parameters ( $\mathbf{X}_0$ ) is required to start the iterative process. A good first guess allows the number of iterations to be reduced and alleviates the problem of finding a solution  $\mathbf{X}$  that is only a local minimum of the cost function  $\Phi$ . We use a LUT approach in order to derive a first estimate of the aerosol optical thickness and aerosol model. The polarized reflectances are calculated for various aerosol optical thicknesses, viewing geometries and aerosol models. We consider 12 fine mode particles models ( $r_g^f = 0.05, 0.1, 0.15, 0.2 \mu\text{m}$ ,  $\sigma^f = 0.4$ ,  $m_r = 1.4, 1.47, 1.54$ ,  $m_i = 0.01$ ). We also include the coarse mode particle model described in Table 1. The polarized reflectances are calculated for aerosol optical thicknesses equal to 0, 0.05, 0.1, 0.2, 0.4, 0.8, 1 and 2 and an interpolation process is used to create a fine step. The first guess corresponds to the aerosol model and aerosol optical thickness that minimize a least squares error term calculated between the measurements and the simulations. We do not describe in details the properties of the coarse mode particles in the LUT. The reason is that the measurements investigated in the third section of this paper correspond to case studies where the small particles largely dominate the size distribution. As a first guess, the aerosol optical thickness of the coarse mode (at 0.55  $\mu\text{m}$ ) will be assumed to be a tenth of the total aerosol optical thickness. The properties of the aerosol models considered in the LUT allow the number density of particles associated with each mode to be derived. For retrieval with real measurements, we consider the use of the LUT to reduce the uncertainties for  $r_g^f$  and  $m_r^f$  given in Table 1 to 0.05 and 0.07, respectively, and we assume a relative uncertainty of 100% for both  $N^f$  and  $N^c$ .

[36] The residual atmospheric effect at 2.25  $\mu\text{m}$  is accounted for in our retrieval process. This effect is usually small and mainly depends on the aerosol size and load [Waquet et al., 2007]. We use the aerosol model retrieved with the shorter bands and a rearranged form of equation (9) to perform an atmospheric correction on the polarized reflectance measured at 2.25  $\mu\text{m}$ . This correction is performed before the first iteration using the retrieved parameters

obtained with the LUT approach and is refined after each iteration step.

#### 4. Sensitivity Study

[37] The retrieval error covariance matrix defined in equation (19) can be used to simulate the retrieval errors obtained for any instrument type with synthetic measurements. In this section, we use this approach to evaluate how the different error sources and the conditions under which measurements are made affect the retrieved parameters and we discuss the sensitivity of the polarization measurements of the RSP instrument to the aerosol properties.

##### 4.1. Aerosol Model Definition

[38] We generate synthetic measurements representative of pollutant aerosols observed over a vegetated surface. The properties of the aerosol model used for the calculations are given in Table 2. The contribution of the coarse mode to the total aerosol optical thickness is assumed to be equal to 0.1 at 0.55  $\mu\text{m}$ . Calculations are made at TOA for an aerosol layer that is confined between the surface and an altitude of 3 km.

[39] We use the a priori knowledge given in Table 1 to specify the  $C_a$  matrix. We consider that the particle number density for both modes are unknown parameters ( $C_a^{-1}_{i,i} \rightarrow 0$ ) and that the height of the aerosol top layer is known with a relative uncertainty of 100%. We also consider that the complex refractive index of the fine mode particles may vary with the wavelength (see Table 2). The complex refractive indices of the materials of which atmospheric aerosols are typically composed show small spectral variation for the visible and near-infrared parts of the spectrum [D'Almeida et al., 1991]. We therefore choose to retrieve a single complex refractive index and to constrain its spectral variation between the RSP bands assuming reasonable ranges of variation. Practically speaking, we retrieve the complex refractive index at 0.41  $\mu\text{m}$  and a set of coefficients that describe its variation between the spectral bands of the RSP. Thus in this case, we use 12 fit parameters to describe the spectral behavior of the complex refractive index between 0.41 and 1.6  $\mu\text{m}$ , i.e.,  $m_r$  and  $m_i$  at 0.41  $\mu\text{m}$ , and five coefficients for both the real and imaginary parts of the refractive index. For materials that do not have strong absorption bands in the spectral range of interest the spectral variation of both the real and the imaginary parts of the particle refractive index should not exceed 0.01 between two successive spectral bands of the RSP, except between the bands centered at 0.87 and 1.6  $\mu\text{m}$ , where the large spectral range means that a maximal variability of 0.1, for the real refractive index, and 0.03 for the imaginary refractive index is realistic. These values define the a priori knowledge associated with the

**Table 3.** Retrieval Errors Obtained for  $\tau^f$ ,  $r_{eff}^f$ ,  $m_r^f$ , and  $\omega_0^f$  for Different Modeling of the Error Covariance Matrix<sup>a</sup>

| Comments/Retrieval Errors   | $\sigma_{\tau^f}$ | $\sigma_{r_{eff}^f} (\times 10^{-3})$ | $\sigma_{m_r^f}$ | $\sigma_{\omega_0^f}$ |
|---|-------------------|---------------------------------------|------------------|-----------------------|
| Reference (see section 4.1)   | 0.04              | 7.0                                   | 0.0165           | 0.034                 |
| (-) Errors due to calibration uncertainty   | 0.025             | 4.9                                   | 0.012            | 0.027                 |
| (-) Errors due to radiometric noise   | 0.038             | 7.0                                   | 0.0161           | 0.032                 |
| (-) Errors due to polarimetric uncertainty  | 0.0365            | 6.7                                   | 0.0157           | 0.031                 |
| (-) Errors due to the spectral dependence of the surface polarized reflectance  | 0.04              | 7.0                                   | 0.0165           | 0.034                 |
| (-) Errors of modeling  | 0.039             | 7.0                                   | 0.0165           | 0.0335                |
| Considering a polarimetric accuracy of 0.005 instead of (0.001 + 0.001 × Q/I)   | 0.061             | 9.0                                   | 0.0235           | 0.052                 |
| Calibration errors spectrally and angularly correlated  | 0.025             | 5.1                                   | 0.0125           | 0.0275                |
| Calibration errors spectrally and angularly correlated with a progressive decrease of the correlation in function of the wavelength and angle | 0.07              | 10.0                                  | 0.032            | 0.052                 |

<sup>a</sup>(-) denotes the suppression of an error type on the calculations. The errors on  $\tau^f$ ,  $m_r^f$ , and  $\omega_0^f$  are given at 0.55  $\mu\text{m}$ . Calculations made for a total aerosol optical thickness of 0.5 at 0.55  $\mu\text{m}$  ( $\tau^f = 0.45$ ) and for  $\theta_s = 45^\circ$  and  $\Delta\phi = 45^\circ$ .

coefficients that characterize the spectral variation of the complex refractive index.

[40] A realistic estimate of inversion uncertainties must include all types of errors. The error covariance matrix accounts for measurement, as well as, modeling errors. We assume that the different sources of errors are independent in which case the total covariance matrix is given by the sum of the different error covariance matrices:

$$\mathbf{C}_T = \mathbf{C}_e + \mathbf{C}_{cal} + \mathbf{C}_{pol} + \mathbf{C}_F. \quad (21)$$

[41]  $\mathbf{C}_e$  accounts for the effects of the instrumental noise,  $\mathbf{C}_{cal}$  for radiometric calibration uncertainties and  $\mathbf{C}_{pol}$  for any additional polarimetric accuracy uncertainties. The error covariance matrices for the RSP instrument, based on its measured signal to noise and calibration performance, are as follows:

$$\begin{aligned} C_{e,i,j} &= \frac{10^{-7}}{\mu_s} \sqrt{R_i R_j} \\ C_{cal,i,j} &= 0.03^2 R_{p,i} R_{p,j}, \\ C_{pol,i,j} &= \left( \left[ 0.001 + 0.001 \frac{R_{p,i}}{R_i} \right] R_i \right) \left( \left[ 0.001 + 0.001 \frac{R_{p,j}}{R_j} \right] R_j \right) \end{aligned} \quad (22)$$

where  $i$  and  $j$  indicate the measurement number. The origin of these equations is detailed in Appendix B. The effects of having correlated measurements errors on the retrieval errors are discussed in section 4.2. For the rest of the paper, the measurement errors are assumed to be not correlated and the error covariance matrices are considered to be diagonal ( $\mathbf{C}_{i,j} = 0$  for  $i \neq j$ ). This is an assumption typically made for most evaluations of instrument and model errors on retrieval accuracies and sensitivities [e.g., Lebsack *et al.*, 2007; Hasekamp and Landgraf, 2007].

[42]  $\mathbf{C}_F$  accounts for the effects of a change of the surface refractive index with wavelength and for the errors introduced by our modeling of the polarized reflectances (see section 2.3).  $\mathbf{C}_F$  is a diagonal matrix and its elements are calculated as follows:

$$C_{F,i,i} = \left( R_{p,i}^{exact} - R_{p,i}^{calc} \right)^2 + \left( R_{p,i}^{exact} - R_{p,i}^{spec} \right)^2. \quad (23)$$

$R_{p,i}^{exact}$  is the polarized reflectance calculated with the surface polarization model that is representative of a vegetated surface using a surface refractive index equal to 1.5.  $R_{p,i}^{calc}$  is the polarized reflectance calculated using the approximation given in equation (12).  $R_{p,i}^{spec}$  is the polarized reflectance calculated using a surface refractive index, which depends on the wavelength. According to the literature, the surface refractive index for natural matter is expected to show a spectral variation of no more than  $0.03 \pm 0.02$  between 0.4 and 2  $\mu\text{m}$  [Pollack *et al.*, 1973]. For the purpose of this sensitivity analysis, we consider a refractive index that varies linearly from 1.50 to 1.53 between 2.25 and 0.41  $\mu\text{m}$ . The errors due to measurement noise depend on the total reflectance since they are dominated by detector shot noise (see equation (22)). We therefore add a Lambertian component to the simple Fresnel surface model in order to simulate a realistic level of noise in each RSP band. The spectral surface albedo is representative of a vegetated surface (deciduous) in order to be coherent with our surface polarization model.

#### 4.2. Error Budget

[43] In Table 3, we report the retrieval errors obtained for the parameters  $\tau^f$ ,  $m_r^f$  and  $\omega_0^f$  at 0.55  $\mu\text{m}$  and for  $r_{eff}^f$  under different assumptions regarding the modeling of the error covariance matrix. The first row of Table 3 gives the retrieval errors obtained with the conditions detailed in section 4.1. Mishchenko *et al.* [2004] formulated the following retrieval requirements for climate research over land: 0.04 or (10%) for the aerosol optical thickness, 0.03 for the single scattering albedo, 0.1 (or 10%) for the effective radius, 0.3 (or 50%) for the effective variance, and 0.02 for the real part of the refractive index. The retrieval requirements are reached for  $r_{eff}^f$  and also for  $\tau^f$  and  $m_r^f$  whereas the errors for  $\omega_0^f$  (at 0.55  $\mu\text{m}$ ) are slightly larger than the requirements.

[44] In rows 2 to 5 of Table 3, we report the retrieval errors obtained when suppressing different error sources. This allows the impact of each error source on the retrieved parameters to be evaluated separately. These results show that the error budget is dominated by the measurement errors caused by calibration uncertainty. The effects of the radiative transfer modeling errors can be neglected, which is as designed: the radiative transfer model itself should never dominate retrieval errors since it can be made as accurate as necessary. This confirms that our approach for modeling the polarized reflectance (see equation (12)) is adequate for

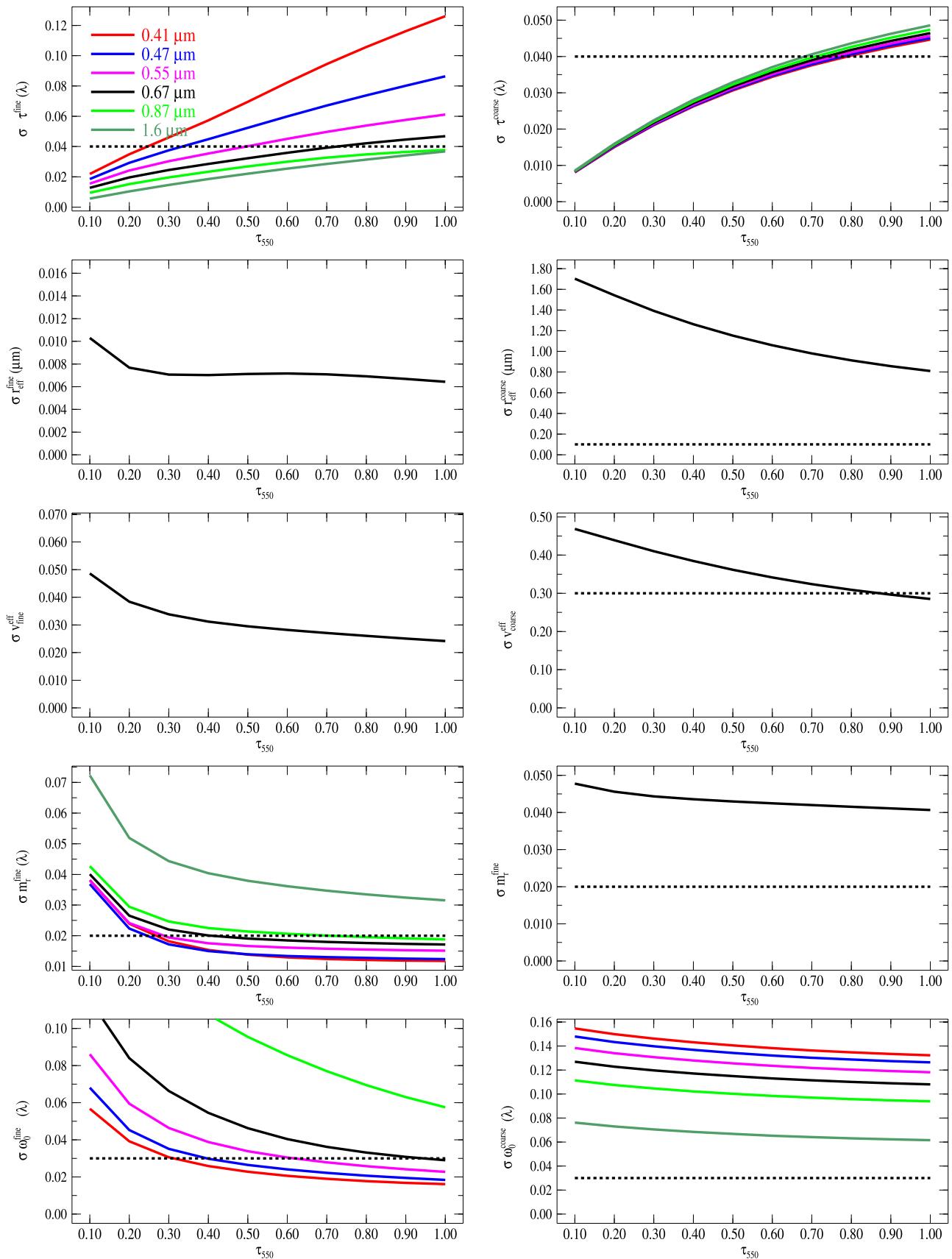


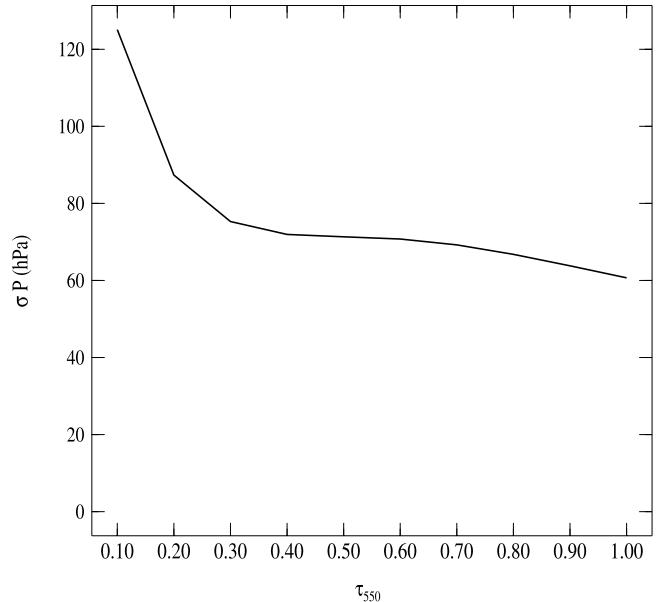
Figure 4

highly accurate measurements with a broad spectral baseline. It also indicates that the effects of a realistic nongray surface polarization do not affect the retrieved parameters, at least for an AOT larger than 0.5 at  $0.55 \mu\text{m}$ . The polarimetric accuracy for the RSP instrument is expected to be better than 0.002 (see equation (22)). When considering a larger error for the polarization ratio of 0.005, we observe a significant increase in the errors and the retrieval requirements are not reached for most aerosol parameters. This result confirms that a high polarimetric accuracy is required in order to derive the aerosol parameters with the level of accuracy suggested by Mishchenko *et al.* [2004].

[45] We also examined the effect of having errors due to calibration uncertainty that are correlated. This is implemented by introducing off-diagonal elements into the calibration covariance matrix that is defined in equation (22). The first case corresponds to measurement errors caused by calibration accuracy that are spectrally and angularly completely correlated as might be the case with a sensor such as the RSP that scans the fields of view of one set of detectors and that uses a pristine white reflector for its radiometric calibration. As shown in Table 3, in this case the errors in the retrieval of the aerosol parameters are significantly smaller than is the case for independent error sources. We also consider the case where the correlation progressively decreases with the wavelength and difference in the view angle. The results show that for a sensor where this is the case the errors in the retrieval of the aerosol parameters are substantially larger than for the base case. This result confirms the findings of Hasekamp and Landgraf [2007], in which a similar tendency was observed. In the following, we use a diagonal error covariance matrix since the results are intermediate between a completely correlated error matrix and one where correlations degrade with spectral and angular distance. It also makes our results more easily comparable with those of previous investigators who invariably use diagonal error covariance matrices.

#### 4.3. Impact of the Particle Load and Size on the Error Budget

[46] The retrieval errors obtained for  $\tau(\lambda)$ ,  $r_{\text{eff}}$ ,  $v_{\text{eff}}$ ,  $m_r(\lambda)$ ,  $m_i(\lambda)$ ,  $\omega_0(\lambda)$  of each mode, are shown in Figure 4 as a function of the total aerosol optical thickness at  $0.55 \mu\text{m}$ . The errors associated with the aerosol parameters generally decrease with aerosol optical thickness (AOT), except for the AOT itself. The contribution of the light scattered by the aerosol to the up-welling polarized light increases with the AOT, which therefore leads to an increase of the sensitivity of our algorithm to the aerosol properties. The increase of the errors associated with the AOT is explained by the fact that the errors in  $N$  increase with  $N$  (not shown) and because the AOT is closely connected to this parameter (see equation (4)). The relative errors in the fine mode AOT however decrease for increasing AOT and remain under the required value for all the wavelengths considered here ( $\sigma_\tau(\lambda)/\tau^f(\lambda) < 10\%$ ). For the fine mode particles,



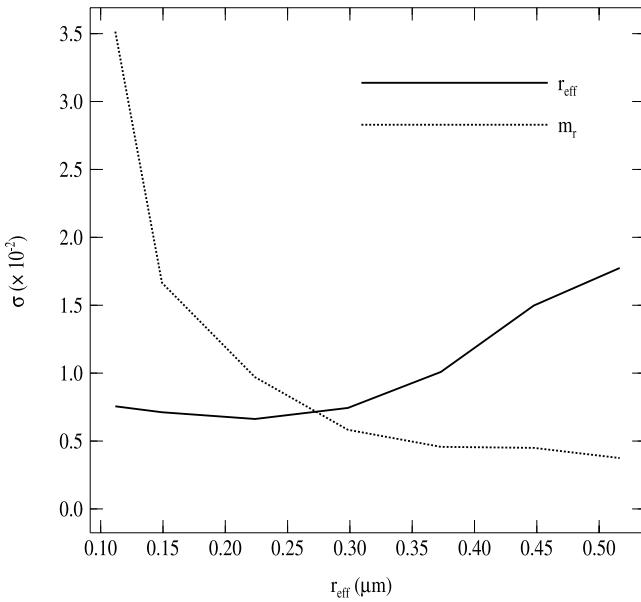
**Figure 5.** Retrieval errors for pressure level of top of aerosol layer,  $P$ , as a function of the total aerosol optical thickness at  $0.55 \mu\text{m}$ .

the requirements for  $r_{\text{eff}}$  and  $v_{\text{eff}}$  are met for any AOT values larger than 0.1 at  $0.55 \mu\text{m}$ , whereas for  $m_r$  and  $\omega_0$ , the requirements are only reached in three spectral bands ( $0.41$ ,  $0.47$ ,  $0.55 \mu\text{m}$ ) and for AOT respectively larger than  $0.3$  and  $0.6$ . For the coarse mode particles, we do not reach the required accuracy for most of the parameters here. This is because the contribution of the coarse mode to the total AOT is small in this test case ( $\tau_c^{0.55}/\tau^{0.55} = 0.1$ ).

[47] Figure 5 shows that there is also useful information about the height of the top of the aerosol layer. The error in the pressure level of the top of the aerosol layer is less than 70 hPa for AOT greater than 0.6 at  $0.55 \mu\text{m}$  when the true mixed layer depth is  $P = 700$  hPa. This corresponds to an error of 0.8 km when the aerosol altitude is 3 km. It is important to note that we are primarily interested in retrieving  $P$  to ensure that large retrieval and/or fitting errors do not occur in the presence of thick aerosol layers such as smoke plumes and that erroneous assumptions about  $P$  do not therefore cause a bias in our retrievals.

[48] The sensitivity of our algorithm to the properties of small particles also varies as a function of their size. Figure 6 shows the retrieval errors obtained for  $m_r^f$  at  $0.55 \mu\text{m}$  and  $r_{\text{eff}}^f$  as a function of the effective radius. The range of effective radius shown in Figure 6 covers the expected range of size for the fine mode ( $0.1$ – $0.6 \mu\text{m}$ ). We observe that the retrieval errors for the real part of the refractive index and effective radius respectively decrease and increase with the effective radius. Figure 6 indicates that the retrieval errors for  $r_{\text{eff}}^f$  remains within the required value for any small particles that belong to the fine mode. It also indicates that the

**Figure 4.** Retrieval errors for the fine mode parameters  $\tau^f$ ,  $r_{\text{eff}}^f$ ,  $v_{\text{eff}}^f$ ,  $m_r^f$ ,  $\omega_0^f$  (right) and for the coarse mode parameters  $\tau^c$ ,  $r_{\text{eff}}^c$ ,  $v_{\text{eff}}^c$ ,  $m_r^c$ ,  $\omega_0^c$  (left). The dashed lines correspond to the accuracy requirements suggested by Mishchenko *et al.* [2004]. The aerosol optical thicknesses associated with each mode can be calculated using the following formulae:  $\tau^c = 0.1\tau$  and  $\tau^f = \tau - \tau^c$ . The properties of the aerosol models used in the calculations are given in Table 3. Computations are performed at TOA for  $\theta_s = 45^\circ$  and  $\Delta\varphi = 45^\circ$ .



**Figure 6.** Retrieval errors for  $r_{\text{eff}}^f$  and  $m_r^f$  at  $0.55 \mu\text{m}$  as a function of the effective radius. Calculations were made for an aerosol optical thickness equal of 0.5 at  $0.55 \mu\text{m}$  and  $\Delta\phi = 45^\circ$ ,  $\theta_s = 45^\circ$ . The aerosols properties used for the calculations are given in Table 3. The sampling of effective radius uses geometric mean radii,  $r_g$ , of 0.075, 0.1, 0.15, 0.20, 0.25, 0.30 and 0.35 with an effective variance of 0.2.

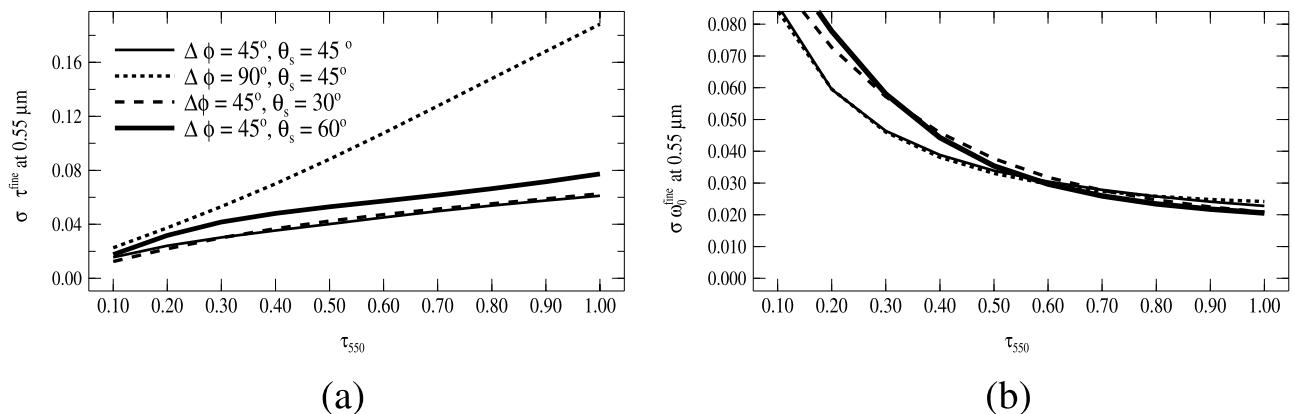
sensitivity of our algorithm to  $m_r$  is largest for the largest particles of the fine mode. The reason for this is that when particles are small compared with the measurement wavelength they act like Rayleigh scatterers [Hansen and Travis, 1974; Mishchenko et al., 2002], and any sensitivity to the refractive index is lost. It is therefore crucial, in order to have sensitivity to the refractive index of fine mode particles, to have measurements at short wavelengths as we describe in the following section.

#### 4.4. Dependence of the Error Budget on the Spectral Range and Viewing Geometry

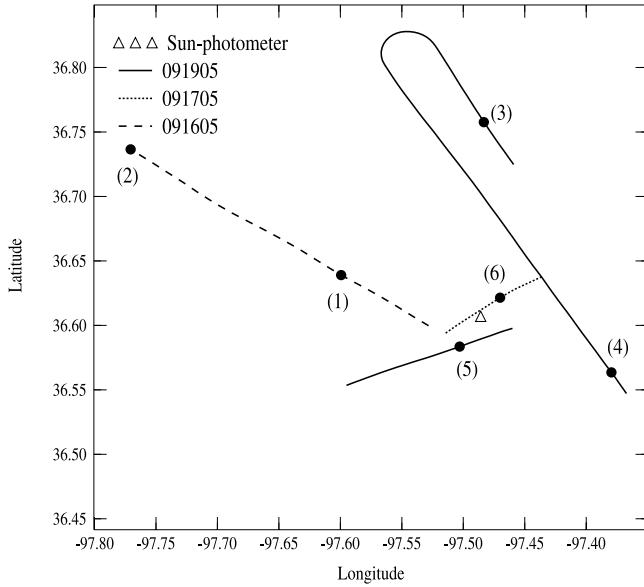
[49] A retrieval error analysis in which the two bands in the blue part of the spectrum are removed ( $0.41$  and  $0.47 \mu\text{m}$ )

gives errors of 0.04 for  $\omega_0^f$  (at  $0.55 \mu\text{m}$ ),  $0.011 \mu\text{m}$  for  $r_{\text{eff}}^f$ ,  $0.03$  for  $m_r^f$  (at  $0.55 \mu\text{m}$ ) and  $140 \text{ hPa}$  for  $P$ . When using the full spectral range of the RSP, we found errors equal to 0.023 for  $\omega_0^f$  (at  $0.41 \mu\text{m}$ ),  $0.007 \mu\text{m}$  for  $r_{\text{eff}}^f$ ,  $0.014$  for  $m_r^f$  (at  $0.41 \mu\text{m}$ ) and  $70$  for  $P$  (calculations made for  $\theta_s = 45^\circ$ ,  $\Delta\phi = 45^\circ$  and  $\text{AOT} = 0.5$  at  $0.55 \mu\text{m}$ , see section 4.1 for other conditions). For the viewing geometry and the atmospheric model considered here, these calculations show that polarized spectral bands shorter than  $0.5 \mu\text{m}$  allow the aerosol top layer height to be estimated together with retrieving  $\omega_0^f$  and  $m_r^f$  within the requirements given by Mishchenko et al. [2004]. Polarization measurements in the visible and near-infrared part of the spectrum ( $0.55 < \lambda < 1.6 \mu\text{m}$ ) only allow the robust retrieval of  $r_{\text{eff}}^f$  and  $\text{AOT}$ . Lebsack et al. [2007] reached similar conclusions although their fine mode particles were large enough that they found sensitivity to refractive index in their analysis of the two POLDER bands at  $0.673$  and  $0.861 \mu\text{m}$ .

[50] Figure 7 shows the retrieval errors obtained for  $\tau^f$  and  $\omega_0^f$  for different viewing geometry as a function of the AOT at  $0.55 \mu\text{m}$ . Calculations are made for different values of relative azimuth angle and solar zenith angle. Figure 7 demonstrates that the errors in the AOT are significantly larger for a relative azimuth angle of  $90^\circ$  than for  $45^\circ$ . Similar behavior is observed for the other aerosol parameters. The errors for  $r_{\text{eff}}^f$ ,  $v_{\text{eff}}^f$  and  $m_r^f$  at  $0.41 \mu\text{m}$  respectively reach 0.012, 0.05 and 0.035 for an AOT of 0.5 at  $0.55 \mu\text{m}$ . The reason is that the measurements performed in the case of a relative azimuth angle of  $45^\circ$  sample a larger range of scattering angle than in the case of a relative azimuth angle of  $90^\circ$ . The solar zenith angle also affects the errors in the retrieval of aerosol parameters. The retrieval errors for an AOT equal to 0.5 are equal to 0.041, 0.040 and 0.053, respectively for  $\theta_s$  equal to  $30$ ,  $45$  and  $60^\circ$ . The errors on  $\omega_0^f$  are also dependent on the relative azimuth angle and on the solar zenith angle as shown in Figure 7. However, it is the magnitude of the AOT that dominates the accuracy of the retrieval of  $\omega_0^f$  primarily because neither remote sensing retrievals, nor the radiation budget of the Earth are really sensitive to the single-scattering albedo *per se*. Rather, the absorption optical depth is the absorption parameter that passive remote sensing is sensitive to and is also what determines whether solar radiation is absorbed in the atmosphere of the Earth. Additional calculations made with



**Figure 7.** Retrieval errors for  $\tau^f$  and  $\omega_0^f$  at  $0.55 \mu\text{m}$  for  $\Delta\phi = 45^\circ$ ,  $\theta_s = 45^\circ$  (solid lines),  $\Delta\phi = 90^\circ$ ,  $\theta_s = 45^\circ$  (dots), and  $\Delta\phi = 45^\circ$ ,  $\theta_s = 30^\circ$  (solid lines).



**Figure 8.** Selection of flight track segments performed during the ALIVE experiment. The triangle indicates the position of the AERONET Sun photometer. The dots and associated numbers indicate the location of scans of measurements shown in Figure 10.

various relative solar azimuth angle values show that all the parameters of the fine mode can be retrieved with the required accuracies (at least in 3 spectral bands for the spectral quantities), for  $\Delta\phi$  varying between 0 and  $65^\circ$  and between  $125$  and  $180^\circ$  (calculations made for  $\theta_s = 45^\circ$ ). For relative azimuth angles between  $65$  and  $125^\circ$  prior assumptions about the real part of the refractive index will become important for the accuracy of the retrievals.

## 5. Application to Field Experiments

[51] In this section, we analyze the data taken by the RSP instrument during the Aerosol Lidar Validation Experiment (ALIVE) in Oklahoma and during a flight performed over a thick smoke plume above the Mojave desert of Southern California.

### 5.1. The ALIVE Experiment

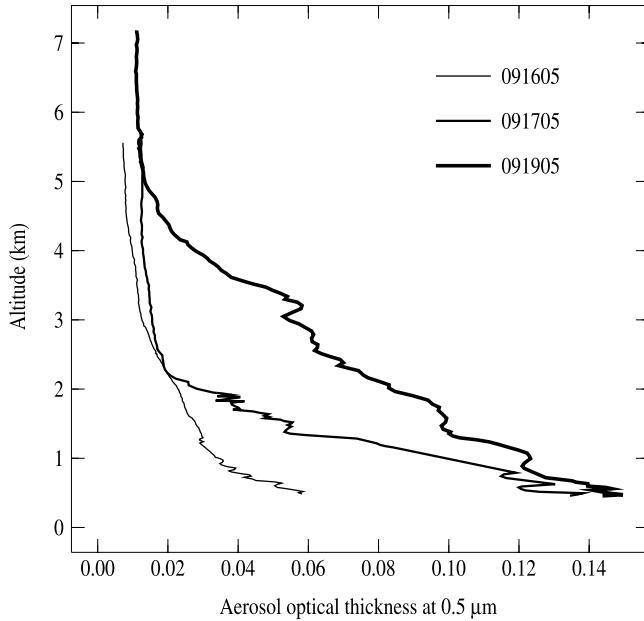
[52] The ALIVE experiment took place over the Department of Energy Atmospheric Radiation Measurements (ARM; [Ackerman and Stokes 2003]) program facility in the Southern Great Plains (SGP). The primary purpose of this campaign was to collect airborne remote sensing data of atmospheric aerosols in order to perform a validation study of the SGP ground-based lidars. The RSP instrument participated in this campaign aboard the Sky Research Inc. Jet stream-31 (J31) research aircraft and acquired good quality data throughout all twelve flights performed between 12 and 22 September 2005. During this campaign, the RSP instrument flew on the J31 in collaboration with the NASA Ames Airborne Tracking 14-Channel Sun photometer (AATS-14). The AATS-14 instrument, mounted on the top of the aircraft, tracks the direct solar beam and measures its attenuation in fourteen spectral channels. These measurements allowed the aerosol optical thickness of the column above the aircraft to be derived in 13 bands between  $0.353$  and  $2.105 \mu\text{m}$  [Russell et al., 1999; Schmid et al., 1997, 2003].

[53] All the flights were organized around the SGP ARM Cloud central facility ( $N36^{\circ}36'25''$ ,  $W97^{\circ}29'09''$ ), which is equipped with a Cimel Sun photometer that is part of the federated Aerosol Robotic Network (AERONET). The operational inversion algorithm developed for the analysis of the AERONET Sun photometer measurements provides the spectral aerosol optical thickness, the aerosol complex refractive index and the particle size distribution between  $0.05$  and  $15 \mu\text{m}$  [Dubovik and King, 2000]. Figure 8 shows examples of flight track segments performed during this campaign. In Table 4, we report the main characteristics of the flights performed during the ALIVE experiment. Table 4 shows that all the flights were performed with low aerosol loading ( $\tau < 0.165$  at  $0.5 \mu\text{m}$ ) and were often perturbed by the occurrence of cirrus. A cloud-screening algorithm has been developed for the analysis of the AATS measurements and allowed us to select scenes for which the direct beam of the sun was cloud free. Vertical profiles of the aerosol properties and columnar water vapor were also derived with the AATS-14 instrument during spiral descents and ascents of the Jet stream-31. Figure 9 shows examples of vertical profiles of the aerosol optical thickness measured by the AATS-14

**Table 4.** Characteristics of the Flights Performed During the ALIVE Experiment<sup>a</sup>

| Date     | Time (UT) | Mean Altitude or Min and Max Values (km) | $\tau^f$ | $\tau^c$ | Comments  |
|----------|-----------|--|----------|----------|---|
| 09/11/05 | —         | —  | —        | —        | technical flight  |
| 09/12/05 | —         | —  | —        | —        | cloudy condition  |
| 09/13/05 | 1730–1845 | 0.5–5.5                                  | —        | —        | no AERONET data available, very clear condition (observed by the AATS-14) |
| 09/16/05 | 1545–1645 | 0.5–5.5                                  | 0.075    | 0.000    | 2 flights, clear condition  |
| 09/17/05 | 2130–2320 | 1.5–5.5                                  | 0.13     | 0.035    | few cirrus  |
| 09/19/05 | 1415–1615 | 0.5–7.5                                  | 0.01     | 0.055    | 2 flights, few cirrus   |
|          | 1730–2000 | 0.5–7.0                                  |          |          |   |
| 09/20/05 | 1530–1715 | 0.5–5.5                                  | 0.135    | 0.040    | 2 flights, many cirrus (first flight only)                                |
|          | 2030–2045 | 0.5–4.5                                  |          |          |   |
| 09/21/05 | 1500–1540 | 0.5–5.5                                  | 0.115    | 0.035    | 2 flights, few Cirrus   |
|          | 1700–1900 | 0.5–7.0                                  |          |          |   |
| 09/22/05 | 1430–1730 | 0.5–4.0                                  | 0.114    | 0.035    | 2 flights, few Cirrus   |
|          | 1830–2200 | 4.0                                      |          |          |   |

<sup>a</sup>The aerosol optical thickness for the fine and coarse modes are given at  $0.5 \mu\text{m}$  and were derived from AERONET observations (daily average).



**Figure 9.** Vertical profile of the AOT measured by the AATS instrument at  $0.5 \mu\text{m}$ .

instrument. The measured profiles show that the particles were located primarily in the first 2 to 3 km of the atmosphere. In the following, we focus on the analysis of the measurements performed on the 16, 17, and 19 September since the observed surfaces and particles were representative of the ones usually observed during the ALIVE campaign.

[54] Figure 10 shows some scans of polarized reflectance measured by the RSP as a function of the view angle. The RSP measurements are corrected for gaseous absorption using a parameterization that has a two-pass transmission correction above the aircraft level and uses an effective absorption optical depth in the calculation of upwelling polarized radiances below the aircraft. The relevant parameters were estimated using correlated  $k$ -distributions [Lacis and Oinas, 1991] with 1-nm widths that were integrated over the RSP spectral band responses. The form of the parameterization is motivated by the fact that the centers of the methane and carbon dioxide absorption lines that affect the  $1.6$  and  $2.25 \mu\text{m}$  bands are saturated high in the atmosphere, such that it is only weaker absorption in line wings that affects the transfer of radiation through aerosol layers in the lower atmosphere. Water vapor continuum absorption is also relevant to the simulation of scattering in the lower atmosphere and is included in the parameterization of the effective absorption optical depth. The amount of column water vapor present is prescribed using AERONET or AATS-14 measurements. The majority of ozone is so high in the atmosphere that it can be accounted for using a

simple transmission correction to the direct beam of the sun, with the ozone column amount being prescribed using the estimates provided by TOMS, or the Ozone Monitoring Instrument (OMI). In the retrieval process, we only include the errors in the measurements described in equation (22). For the measurements performed during the ALIVE campaign, we conservatively estimate an absolute radiometric calibration uncertainty equal to 6% for the bands centered at  $0.41$ ,  $0.47$ ,  $0.55$  and  $0.67 \mu\text{m}$  and 3% for the others (see Appendix C for source of calibration). The viewing geometries that correspond to scattering angles larger than  $160^\circ$  are not considered in the retrieval process and are therefore not shown (see section 2).

[55] During the ALIVE campaign, we observed heterogeneous scenes consisting of vegetated surfaces and bare soil. Different parts of the scan therefore view different surface types that are associated with different magnitudes of the surface polarization, which explains the strong fluctuations that are observed in the measured polarized reflectances. It is important to note that the fluctuations in all the spectral bands are strongly correlated. The differences in the polarization magnitude from one scan to another can be explained by a change in the observed surfaces (e.g., scans (a) and (b)) or by a change in the viewing geometry (e.g., scans (c) and (d)). The scans were performed in different planes of observation, which provided measurements with different ranges of scattering angle (see Table 5). The angular and spectral behavior is consistent with our hypotheses regarding the surface polarization properties. The spectral behavior of the observed polarized reflectance is similar to that of atmospheric scattering, which is consistent with our hypothesis that the surface polarization does not show much spectral dependence. The polarized reflectance decreases with the scattering angle, which is consistent with all the extant observations in the literature that have shown that the Fresnel law is the primary determinant of the surface polarization over land.

[56] In Figure 10, we show the polarized reflectance simulated at the aircraft altitude. We observe that the use of the  $2.25 \mu\text{m}$  measurement allows the effects of the various surface types to be compensated efficiently. For scans (a) and (b), we report the results obtained with the LUT approach, since the latter is sufficient to obtain a fit of the measurements within the expected uncertainties. For the others cases, we use the whole retrieval process including the parameters  $N^f$ ,  $r_g^f$ ,  $\sigma^f$  and  $m_r^f$ . We do not try to retrieve the absorption and the altitude of the aerosol since the sensitivity to these parameters is weak at such low AOT. Figure 10 shows that the assumptions made allow good fits to be obtained for each set of measurements. The maximal error in the modeling of the polarized reflectance is equal to  $4 \times 10^{-3}$  and is observed at the maximal polarization level for the observations performed under very clear conditions (see Figure 10b). For the others cases associated with

**Figure 10.** Polarized reflectance measured at the aircraft level (solid lines) and simulated polarized reflectance (dashed lines) as a function of the viewing angle. The wavelengths of the data and simulations are  $0.41$ ,  $0.47$ ,  $0.55$ ,  $0.67$ ,  $0.865$ , and  $1.6 \mu\text{m}$  respectively in blue, magenta, black, green, dark green, and brown. The differences between the simulated and measured polarized reflectances are shown at the top of the figures. Scans (a) and (b) performed on 16 September 2005, scans (c), (d) and (e) performed on 19 September 2005, and scan (f) performed on 17 September 2005. See Table 5 for associated viewing geometry and atmospheric conditions and Figure 8 for the location.

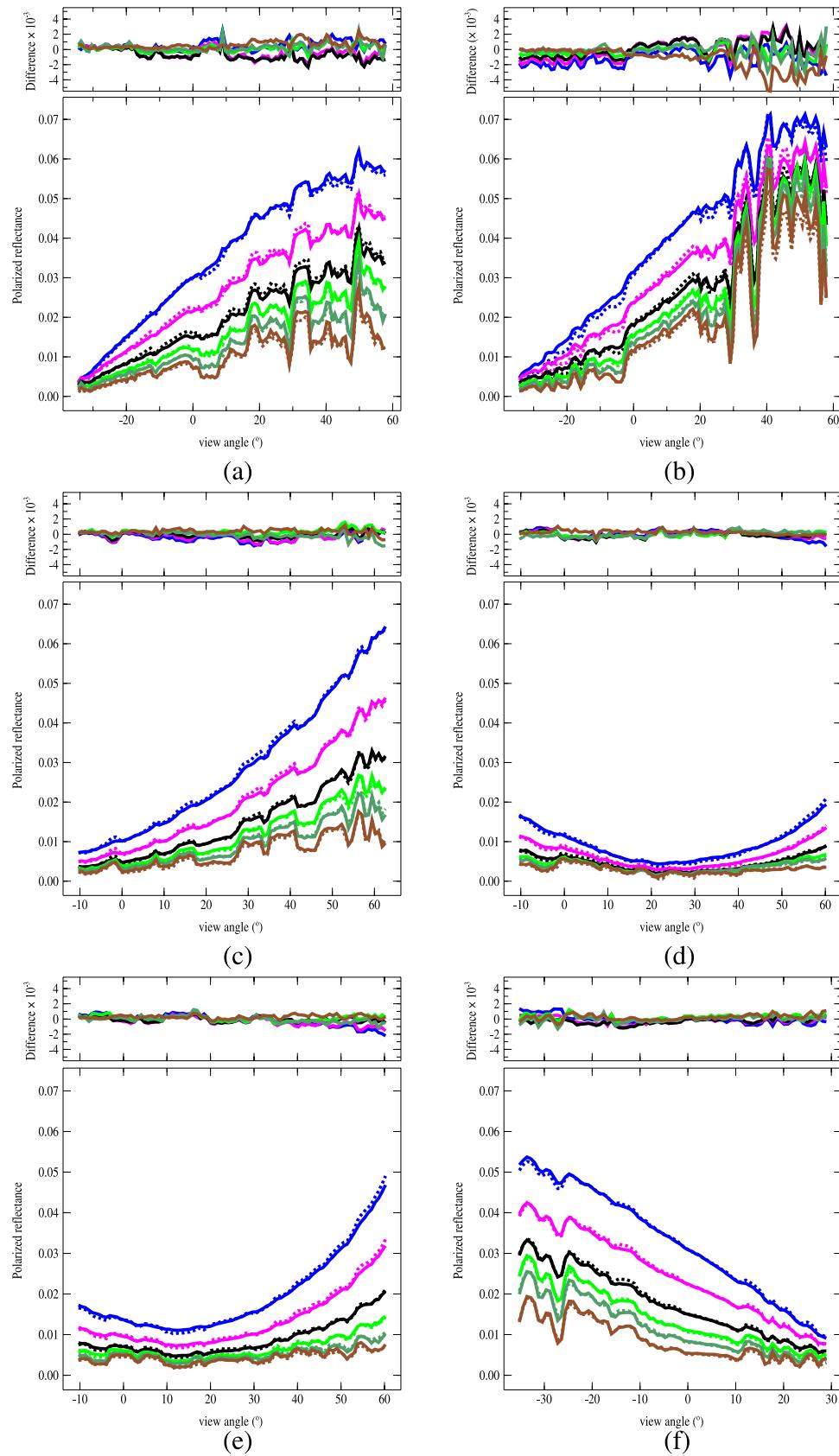


Figure 10

**Table 5.** Viewing Geometries Associated With the RSP Scans in Figure 10<sup>a</sup>

| Scan | Viewing Geometry |            |          | RSP Retrievals               |                  |               | AERONET Retrievals              |                                 |                    |                              |
|------|------------------|------------|----------|------------------------------|------------------|---------------|---------------------------------|---------------------------------|--------------------|------------------------------|
|      | $\Theta$         | $\theta_s$ | $\phi_r$ | $\tau$ (0.67 $\mu\text{m}$ ) | $r_{\text{eff}}$ | $m_r$         | $\tau^f$ (0.675 $\mu\text{m}$ ) | $\tau^c$ (0.675 $\mu\text{m}$ ) | $r_{\text{eff}}^f$ | $m_r$ (0.675 $\mu\text{m}$ ) |
| a    | 70–160           | 56         | −186     | 0.045                        | —                | —             | 0.03                            | 0.013                           | 0.14               | 1.46                         |
| b    | 70–160           | 56         | −186     | 0.04                         | —                | —             | —                               | —                               | —                  | —                            |
| c    | 90–150           | 36         | −130     | 0.085 (0.005)                | 0.175 (0.005)    | 1.50 (0.01)   | 0.08                            | 0.05                            | 0.165              | 1.48                         |
| d    | 135–160          | 36.5       | 37       | 0.09 (0.01)                  | 0.19 (0.005)     | 1.475 (0.02)  | —                               | —                               | —                  | —                            |
| e    | 125–145          | 35         | −67      | 0.07 (0.005)                 | 0.18 (0.01)      | 1.475 (0.015) | —                               | —                               | —                  | —                            |
| f    | 85–150           | 59         | 6        | 0.095 (0.005)                | 0.19 (0.005)     | 1.42 (0.01)   | 0.075                           | 0.025                           | 0.165              | 1.35                         |

<sup>a</sup>The aerosol parameters were retrieved from the RSP and AERONET measurements. Aircraft and ground-based measurements performed within 15 minutes. The values in brackets correspond to the standard deviation associated with the retrieved parameters.

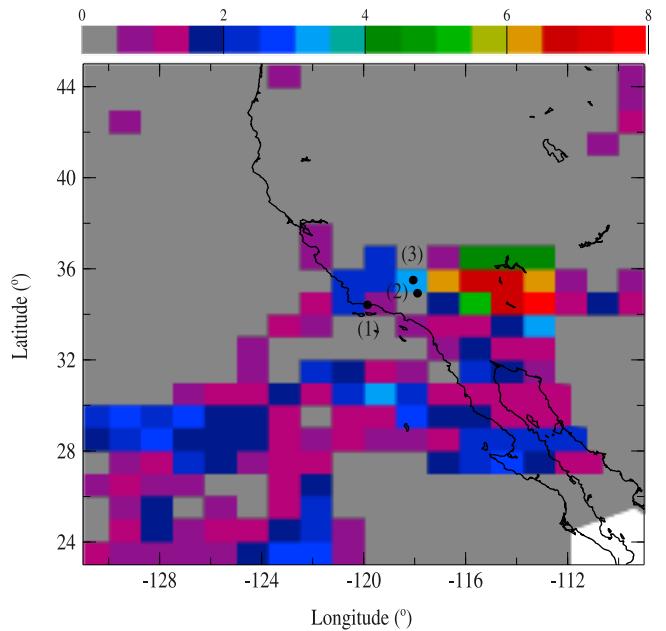
slightly larger AOTs, the maximal errors on the modeling of the polarized reflectance do not exceed  $2 \times 10^{-3}$ . In Table 5, together with the viewing geometry associated with each scan, we report the aerosol parameters retrieved with the RSP measurements and the coincident AERONET retrievals. These results show that our approach allows the AOT of the fine mode particles to be retrieved with a maximal error of 0.02 at 0.67  $\mu\text{m}$ . The effective radius is retrieved with a maximum error of 0.025  $\mu\text{m}$ , which indicates that the spectral dependence of the fine mode AOT is also well retrieved. The agreement between the retrieved refractive indices is good for 19 September 2005 with a bias of 0.003 and standard deviation of 0.014, but on 17 September 2005 the retrieval using RSP data is 1.42 while the retrieval using Cimel data is 1.35. The fact that the Cimel estimates of AOT are also biased low against the polarimetric retrievals by 0.02 suggests that the Cimel refractive index estimates may be the source of the discrepancy [Dubovik and King, 2000, Figure 4]. This is particularly likely given that the relative humidity at that time was only 55%, which is far too low to strongly hydrate small particles to a level where a refractive index of 1.35 is reasonable.

[57] The uncertainty in the refractive index retrieved with our algorithm is lower than that we presented in our sensitivity study analysis for the same AOT (see Figure 4). This is because the sensitivity of the polarization measurements to aerosol properties is slightly larger for the case of aircraft observations than for the case of observations from space. The inclusion of the coarse mode particles in the inversion slightly affects the retrievals obtained for the fine mode and the retrieval error budget. For instance, when including the coarse mode parameters (i.e.,  $N^c$ ,  $r_g^c$ ,  $\sigma^c$  and  $m_r^c$ ) in the inversion, we found for scan (e):  $\tau_{0.67}^f = 0.095$  (0.01),  $r_{\text{eff}}^f = 0.18$  (0.01)  $\mu\text{m}$ ,  $m_r^f = 1.47$  (0.02),  $\tau_{0.67}^c = 3.6 \times 10^{-4}$  ( $3.2 \times 10^{-4}$ ),  $r_{\text{eff}}^c = 1.97$  (1.85)  $\mu\text{m}$  and  $m_r^c = 1.53$  (0.05); for scan (f), we found:  $\tau_{0.67}^f = 0.065$  (0.005),  $r_{\text{eff}}^f = 0.17$  (0.005)  $\mu\text{m}$ ,  $m_r^f = 1.47$  (0.02),  $\tau_{0.67}^c = 1 \times 10^{-4}$  ( $0.8 \times 10^{-4}$ ),  $r_{\text{eff}}^c = 1.935$  (1.8)  $\mu\text{m}$  and  $m_r^c = 1.535$  (0.05). We found maximal changes of 0.025 for the fine mode AOT, 0.02  $\mu\text{m}$  for the fine mode effective radius and 0.05 for the fine mode real refractive index. The fitting accuracy is slightly reduced when considering the coarse mode particles in the inversion, i.e., error term of  $0.27 \times 10^{-6}$  instead of  $0.25 \times 10^{-6}$ , for scan (e) and error term of  $0.25 \times 10^{-6}$  instead of  $0.2 \times 10^{-6}$  for scan (f). The retrieved coarse mode AOTs are extremely small and associated with large standard deviation values. The other characteristics of the coarse mode particles (size and refractive index) are therefore not accurately retrieved. These results indicate that

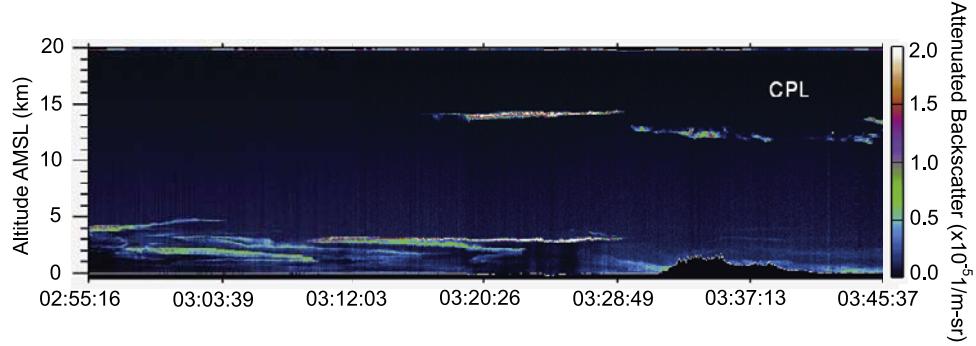
there is little sensitivity of our approach to the coarse mode particles at least for coarse mode AOTs less than 0.05 with a very large coarse particle mode. For such low AOT, the effects of the coarse particles on the fine mode retrievals can be considered as a nuisance parameter and should be included in the total error covariance matrix.

## 5.2. Smoke Measurements

[58] Several massive wildfires were raging across Southern California in late October 2003, burning more than 300,000 hectares of biome [Keeley, 2004] and affecting the atmospheric chemistry and air quality [Mühle et al., 2007]. On 29 October 2003, the RSP instrument, installed on a small survey plane (Cessna 310), flew over some fires in the Simi Valley and over the Mojave Desert to where a significant amount of smoke had been transported. Biomass burning particles are usually characterized by large absorption properties and a size distribution dominated by the fine mode [Dubovik et al., 2002]. These particles are usually injected into the atmosphere at high altitudes and can be transported [Hsu et al., 2004] over long distances [Hoff et al., 2005, Hlavka et al., 2005]. These characteristics have



**Figure 11.** Aerosol index TOMS daily image for 29 October 2003. Dots: (1) and (2) locations of the AERONET Sun photometers based at the UCSB and Rogers Dry Lake stations; (3) location of the RSP scan shown in Figure 14.

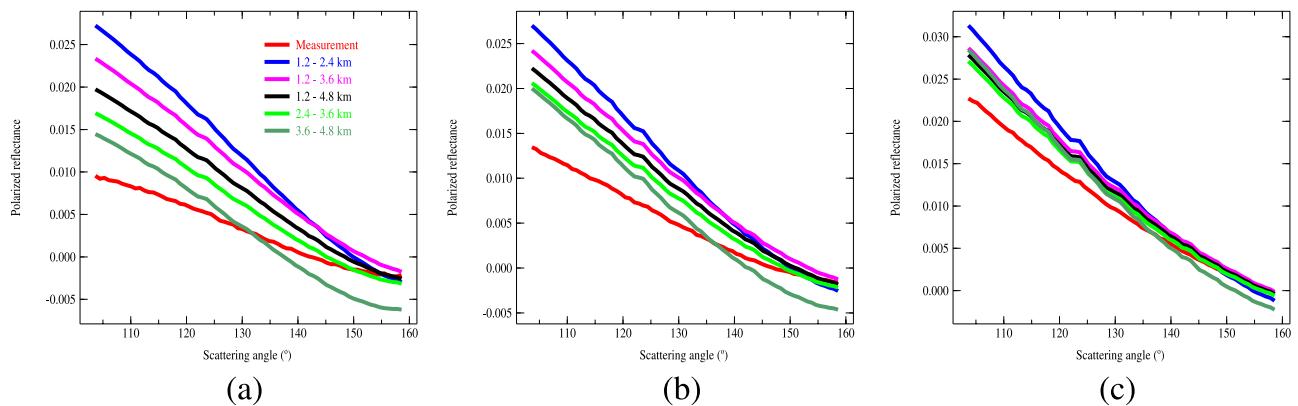


**Figure 12.** Backscattering lidar coefficient profiles measured at  $0.532 \mu\text{m}$  by the CPL instrument shown as a function of acquisition time. Measurements performed on 28 October 2003.

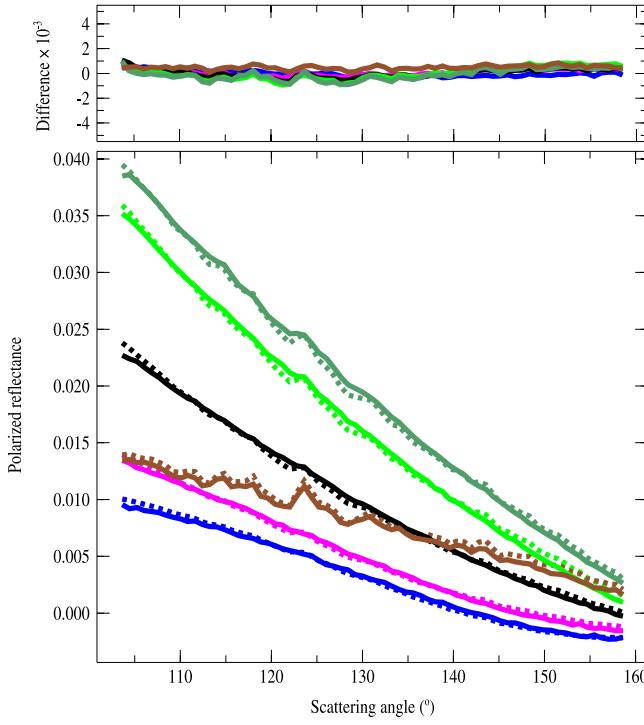
been confirmed from space-based and ground-based observations. In Figure 11, we show the Aerosol Index derived from the TOMS Earth Probe observations. We observe that the smoke plume was extended over the south of the USA and Mexico and was being transported west. Values as large as 8 can be observed, which is indicative of the presence of a large amount of absorbing particles in the air at high altitude [Herman *et al.*, 1997]. The aerosol load was highly variable on 29 October 2003 and there was some patchy cirrus cloud cover present. The Sun photometer located on the west coast at the University of California at Santa Barbara station ( $N 34^{\circ}24'54''$ ,  $W 119^{\circ}50'42''$ ) performed measurements for clear-sky conditions just after the end of the flight. The AOTs of the fine and coarse mode were 1.385 and 0.039 respectively at a reference wavelength of  $0.5 \mu\text{m}$ . This observation confirms that the absorbing aerosols observed by TOMS mainly belonged to the fine mode. Some information about the vertical extent of the smoke plumes was also available. The NASA Goddard Space Flight Center (GSFC) Cloud Physics Lidar (CPL) obtained measurements from the NASA ER-2 aircraft over southern California the day prior to the RSP flight. In Figure 12, we show the backscattering lidar coefficient measured at  $0.532 \mu\text{m}$  by the CPL instrument. These measurements show aerosol layers detached from the ground that are

located between 1 and 5 km as well as some thin cirrus on the second part of the flight track.

[59] In the following, we investigate measurements performed during the over-flight of the Mojave Desert. During this part of the flight observers on the plane noted that there was minimal cirrus cloud cover overhead and that the top of the aerosol layer was close to the aircraft level. In order to study the effects of the aerosol vertical distribution on the polarization measurements, we considered different atmospheric structures in the LUT calculations. We calculated the polarized reflectance contained in the LUT under the assumption that the particles were located between the surface and three different aerosol layer top heights equal to 2.4, 3.6 and 4.8 km. These values are chosen based on the aircraft and surface altitudes (4.8 and 1.2 km respectively) and allow us to break the aerosol into three layers each of 1.2 km thickness. We also consider the case where the aerosol layer may be detached from the ground and allowed the aerosol layer to be located between 2.4 and 3.6 km, 2.4 and 4.8 km, or 3.6 and 4.8 km. We show in Figure 13 the polarized reflectance measured at  $0.41$ ,  $0.47$  and  $0.55 \mu\text{m}$  and the polarized reflectance calculated for different atmospheric profiles. The calculations are made for the aerosol model that is retrieved for the case in which the particles are located between the 3.6 and 4.8 km.



**Figure 13.** Polarized reflectance at (a)  $0.41$ , (b)  $0.47$ , (c)  $0.55 \mu\text{m}$  as a function of the scattering angle. Measurements (red lines) and simulations calculated for different atmospheric profiles: aerosols between the surface and 2.4 km (blue), 3.6 km (magenta), 4.8 km (black), between 2.4 and 4.8 km (green) and between 3.6 and 4.8 km (dark green). Calculations made for an AOT of 0.57 at  $0.67 \mu\text{m}$  and the aerosol model used for the LUT calculations ( $m_L = 1.54 - 0.01i$ ,  $r_g = 0.1 \mu\text{m}$ ,  $\sigma = 0.4$ ).



**Figure 14.** Scan of polarized reflectance measured by the RSP instrument over the smoke plume as a function of the scattering angle. The wavelengths are 0.41, 0.47, 0.55, 0.67, 0.87, and 1.6  $\mu\text{m}$  and are shown respectively as blue, magenta, black, green, dark green, and brown. The differences between the measured (solid lines) and simulated (dashed lines) polarized reflectances are shown on top. The measurements were acquired in the principal plane with a solar zenith angle of 50°.

[60] We observe that the effects of the aerosol vertical distribution on the polarization measurements decrease with the wavelength, as expected. The simulations performed at 0.41 and 0.47  $\mu\text{m}$  show that there is a strong sensitivity to the aerosol vertical distribution, including sensitivity to the aerosol layer top and base heights. We see in Figures 13a and 13b, that we need to increase the aerosol layer top height and also to detach the aerosol layer from the ground in the calculations in order to reduce the differences between measurements and simulations. The best solution is obtained for an aerosol layer located between 3.6 and 4.8 km with an AOT of 0.57 at 0.67  $\mu\text{m}$ ,  $r_g = 0.1 \mu\text{m}$  and  $m_r = 1.54$ . The second best solution is very close to the first one in terms of fitting accuracy (error term of  $0.6 \times 10^{-5}$  instead of  $0.55 \times 10^{-5}$ ) and corresponds to an aerosol layer located between 2.4 and 4.8 km, an AOT of 0.69 at 0.67  $\mu\text{m}$ ,  $r_g = 0.1 \mu\text{m}$  and  $m_r = 1.54$ . The other solutions (i.e., other combinations of aerosol model and vertical structure) lead to error terms significantly larger ( $> 10^{-5}$ ) and are therefore rejected.

[61] In Figure 14, we show the polarized reflectance measured between 0.41 and 1.6  $\mu\text{m}$  as a function of the scattering angle. The measured polarized reflectance exhibits an unusual spectral dependence, the signal increasing from 0.41 to 0.87  $\mu\text{m}$  and then decreasing at 1.6  $\mu\text{m}$ . This is explained by the fact that the contribution of the molecules

below the aerosol layer is reduced by attenuation through the smoke plume. The fact that the measurements were acquired just above the aerosol layer also tends to minimize the contribution of molecules to the RSP measurements. The spectral dependence of the observed polarized reflectance is therefore determined by that of the aerosols. We include all the parameters of the fine mode in the retrieval process as well as the aerosol layer top height. Based on the LUT retrievals, the a priori value for the aerosol layer top height is set at 4.2 km with an a priori uncertainty of 0.6 km and the aerosol layer base height is fixed at an altitude of 3.6 km. We consider a spectrally flat refractive index and we do not include the coarse mode in the inversion. Potential modeling errors due to the neglect of the coarse mode particles are included in the total error covariance matrix. Figure 14 shows that the assumptions allowed a good fit to the measurements to be obtained. The convergence is achieved after five iterations. We obtain an AOT equal to 0.58 (0.01) at 0.67  $\mu\text{m}$ , the retrieved effective radius and the variance are respectively equal to 0.165  $\mu\text{m}$  (0.0015) and 0.25 (0.005), the real and imaginary refractive indices are equal to 1.505 (0.01) and 0.0315i (0.0015), respectively and  $P$  is equal to 560 hPa (Figure 10), corresponding to a height of 4.8 km. We retrieve a small effective radius and a high real refractive index, which is characteristic of the properties of the biomass burning particles [Dubovik et al., 2002]. The retrieved imaginary refractive index leads to a single scattering albedo of 0.85 (0.005) at 0.55  $\mu\text{m}$ . This value is rather similar to other estimates made for African savanna biomass burning particles ( $0.84 < \omega_0 < 0.88$ ) [Dubovik et al., 2002] and for fresh biomass burning particles observed in the vicinity of the source (0.86) [Torres et al., 1998].

[62] Additional calculations show that there is a sensitivity of the retrievals to the aerosol layer base height. When we decrease the aerosol layer base height in the calculations, we observe an increase in the complex refractive index and AOT and a decrease of the particle size as well as a decrease of the fitting accuracy. For instance, when performing the retrieval with an aerosol layer base height of 2.4 km instead of 3.6 km, we found  $\tau_{0.67} = 0.59$ ,  $r_{eff} = 0.16 \mu\text{m}$ ,  $m = 1.53 - 0.035i$ ,  $P = 559$  hPa and a single scattering albedo of 0.83. The fitting accuracy is only weakly reduced ( $0.2 \times 10^{-6}$  instead of  $0.15 \times 10^{-6}$ ). The fitting accuracy is significantly reduced ( $0.4 \times 10^{-6} < \text{error term} < 10^{-5}$ ) for aerosol layer base height smaller than 1.8 km. This indicates that the thickness of the aerosol layer must be less than 3 km in order to fit the measurements. The lidar measurements shown in Figure 12 suggest smaller thickness for the aerosol layer. This analysis shows that the aerosol layer base height cannot be accurately retrieved, but does affect the retrieved aerosol microphysical properties, and should therefore be considered as a nuisance factor that should be integrated over as part of any retrieval process. Assuming that the aerosol layer thickness is less than 2.4 km, we estimate the uncertainties in the retrieved parameters to be equal to 0.03 for  $\tau_{0.67}$ , 0.005 for  $r_{eff}$ , 0.02 for  $m_r$  and 0.003 for  $m_i$ .

[63] The AERONET Cimel Sun photometer located at the Rogers Dry Lake (RDL) station was the closest one to the flight track segment ( $\approx 80$  km, see Figure 11). During the time when the RSP instrument flew (1930 to 2040 UT), the measured AOT varied between 0.2 and 0.7 at 0.67  $\mu\text{m}$ . These

**Table 6.** Parameters in the Decomposition of the AERONET Cimel Spectral AOT Into a Cirrus Component and an Accumulation Mode With an Angstrom Power Law for the Four Measurements Surrounding the RSP Estimate

| Data Source | Time (UT) | Total AOT | Cirrus AOT | Accumulation Mode AOT | Angstrom Power Law |
|-------------|-----------|-----------|------------|-----------------------|--------------------|
| AERONET     | 19:46     | 0.38      | 0.05       | 0.33                  | 1.66               |
| AERONET     | 19:52     | 0.44      | 0.08       | 0.38                  | 1.66               |
| RSP         | 20:01     | 0.56      | 0.00       | 0.56 (0.03)           | 1.73 (0.07)        |
| AERONET     | 20:07     | 0.67      | 0.21       | 0.46                  | 1.71               |
| AERONET     | 20:22     | 0.71      | 0.10       | 0.61                  | 1.62               |

data were however classified as cloud contaminated due to the presence of cirrus, although the smoke particle contribution probably dominated the optical depth, and for this reason no aerosol microphysical retrievals were performed. Observers in the aircraft noted that the data for which we have performed retrievals using RSP data were free of cirrus contamination but that cirrus was quite widespread. It is therefore reasonable, given the absence of any more detailed decomposition of the spectral AOT, to model the Cimel AOTs as being composed of cirrus and an accumulation mode that has a spectral AOT with a power law Angstrom dependence viz.,

$$\tau(\lambda) = \tau_{Cirrus} + \left( \frac{\lambda}{675} \right)^{-\alpha} \tau_{Acc}(675). \quad (24)$$

This simple model fits all the Cimel observations from 0.34 to 1.64  $\mu\text{m}$  with an average absolute deviation of 0.02 that justifies the use of the power law exponent and accumulation mode optical depth as appropriate summary quantities to compare with the RSP retrievals. The primary reasons for using this decomposition are to reduce the impact of cirrus on the comparison and because aerosol microphysical properties (for which the Angstrom power law parameter is a proxy) typically vary less spatially and temporally than the aerosol burden and should therefore provide a better test of the validity of our retrieval than just looking at a single AOT. The AOT retrieved by the RSP ( $0.56 \pm 0.03$ ) is only within 0.1 of the Cimel accumulation mode AOT for the Sun photometer observation that is closest in time. However, the heterogeneity of the AOT and the distance between the RSP observation and the Cimel observation means that this difference is certainly within the observational uncertainty as can be seen by the rapid increase in accumulation mode AOT at RDL in the period after the RSP observations. For example, the Cimel AOT is  $0.45 \pm 0.12$  if the standard deviation is estimated over the 40 minutes bracketing the polarimetric estimate. Although the accumulation mode AOT changed by 20% at RDL over the 15 minute period that brackets the RSP observations the Angstrom power law only changed by 3% in this time. The fact that our Angstrom power law retrieval 1.73 (0.07) agrees within the average of the Cimel values, 1.66 (0.04), within the combined uncertainty of the two estimates demonstrates the realism of our size distribution retrieval as does the fact that over the entire period summarized in Table 6 the difference between our retrieved Angstrom power law exponent and that estimated from the Cimel data is never more than 0.11.

[64] We have also calculated the TOMS aerosol index using the aerosol model and the vertical structure retrieved with the RSP instrument. We assume that the absorption properties retrieved in the visible part of the spectrum remain valid in the TOMS spectral bands (0.34–0.38  $\mu\text{m}$ ) and use a

surface albedo of 0.05 for the calculations of the UV radiances. We calculated an Aerosol Index (AI) of 2.0 when the aerosol layer is assumed to lie between 3.6 and 4.8 km and an AI of 1.8 when the layer is assumed to lie between 2.4 and 4.8 km. If the thickness of the aerosol layer is reduced to 300 m similar to the smoke layers shown in Figure 12 the calculated AI is 2.3. The TOMS AI in the pixel that includes the location of our measurements is 3. Our measurements were however made on the southern edge of that pixel, with the pixel to the south being cloud contaminated. If we interpolate the TOMS AI to the location of our measurements using the surrounding values we obtain a TOMS AI value of 2.25. The good agreement between this interpolated TOMS AI value of 2.25 and the value predicted by our aerosol retrieval (assuming a 300 m aerosol layer) demonstrates that our aerosol retrieval is consistent with the TOMS AI within the range of uncertainty caused by the aerosol layer thickness. The agreement between the model calculated values and the TOMS AI product indicates that the vertical structure and single scattering albedo of our retrieval is consistent with spectral radiances observed in the UV.

## 6. Summary and Conclusions

[65] We have demonstrated that the polarization of light reflected by land surfaces can be represented sufficiently accurately for most purposes using a simple model constrained using the long wavelength (2.25  $\mu\text{m}$ ) measurements. Without such measurements errors in the assumed surface model will tend to dominate the retrieval [Waquet et al., 2007], because only prior information is available to constrain the surface polarized reflectance. This surface model has been incorporated into an optimal estimation scheme for the determination of aerosol properties from polarimetric observations and was shown in a theoretical sensitivity analysis to provide a highly accurate estimate of the aerosol optical depth and microphysical model. This sensitivity analysis also showed the value of having short-wavelength polarimetric observations in order to estimate the vertical distribution of aerosols and the amount of light that aerosols absorb. Previous authors have noted the importance of errors caused by forward model assumptions [Lebsack et al., 2007], but our analysis demonstrates that if a sufficient range of observations (spectrally and in terms of angular sampling) are available, the number of model assumptions can be reduced and the retrieval accuracy is indeed limited by the measurement accuracy, as indicated by more simplistic previous analyses [Mishchenko and Travis, 1997a].

[66] Our sensitivity study was then evaluated against the retrieval products provided by the analysis of Cimel sun/sky radiometer observations [Dubovik and King, 2000] and TOMS AI [Torres et al., 1998]. At low AOT (<0.1) the differences between our retrievals of AOT and those from a

Cimel sunphotometer are 0.008 (0.01) for the AOT, 0.019 (0.008)  $\mu\text{m}$  for the effective radius and 0.02 (0.035) for the real refractive index where in each case the first number is the bias and the number in parentheses is the standard deviation. The only retrieved parameter where the discrepancy is larger than expected is the real refractive index and as we noted above this is also within the acceptable range of the combined uncertainties of the two estimates. These results demonstrate that even in pristine environments aerosol retrievals with the required accuracy [Mishchenko *et al.*, 2004] are possible using only polarized radiance observations provided a broad spectral range of measurements is available. This is in pronounced contrast to a previous analysis of the measurements available from POLDER where it was suggested that retrieval errors of 150% for AOT and refractive index were likely [Lebsack *et al.*, 2007]. At high AOT ( $>0.5$ ) the lack of close spatial coincidence between the RSP aerosol retrievals and the Cimel sunphotometer, the cloud conditions and strong spatial gradients in the aerosol load make definitive validation of our aerosol retrievals we obtained over the smoke plumes problematic. We do however have consistency within the experimental uncertainties between our retrieval of AOT and Angstrom power law parameter and those estimated from Cimel observations. The calculated AI also agrees with the TOMS AI within the experimental uncertainties indicating that the vertical structure, aerosol single scattering albedo and AOT that we retrieved are at least a good predictor of UV radiances.

[67] Theoretical analysis and direct comparison to independent measurements demonstrate the capability of polarized radiance measurements to allow the retrieval of a detailed aerosol microphysical model and AOT over land surfaces. As we noted above, at high optical depths, the vertical structure of the aerosols acts as a nuisance parameter in the aerosol retrieval process, reducing the accuracy of the estimate of single-scattering albedo and AOT. The combination of polarization observations with simultaneous lidar observations, or high spectral resolution A-band radiometer observations, would therefore allow for more accurate aerosol retrievals under these conditions. The optimal estimation framework presented here allows that to be done quite easily and the planned launch of the NASA Glory APS into NASA's A-train constellation of satellites in June 2009 will allow this approach to be extended and applied to observations made by APS and the CALIPSO lidar, or the Orbiting Carbon Observatory A-band radiometer. An earlier opportunity to evaluate the combination of polarimetry, of the type analyzed here, and lidar observations will occur during the summer of 2008 when the RSP flies on the same aircraft as a High Spectral Resolution Lidar as part of the Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites field experiment that is part of the International Polar Year. As the results presented here demonstrate the use of aircraft data to evaluate and develop aerosol retrieval algorithms is invaluable.

## Appendix A: Description of the Research Scanning Polarimeter

[68] The Research Scanning Polarimeter (RSP) was designed to collect data for atmospheric studies being

conducted by NASA GISS and Columbia University science teams, and is the basis for the functional design of the Aerosol Polarimetry Sensor that is scheduled for launch as part of the NASA Glory mission in June of 2009.

[69] The RSP instrument uses a polarization compensated scan mirror assembly to scan the fields of view of six boresighted, refractive relay telescopes through  $\pm 60^\circ$  from the normal with respect to the instrument base-plate. The refractive telescopes are paired, with each pair making measurements in three spectral bands. One telescope in each pair makes measurements of the two orthogonal polarization states at  $0^\circ$  and  $90^\circ$  to the meridional plane of the instrument while the other telescope simultaneously measures equivalent intensities for orthogonal polarization states at  $45^\circ$  and  $135^\circ$ . The orthogonal polarization states are spatially separated by a Wollaston prism and measured simultaneously on paired detectors. This approach ensures that the polarization signal is not contaminated by uncorrelated spatial or temporal scene intensity variations during the course of the polarization measurements, which could create "false" polarization. These measurements in each instantaneous field of view in a scan provide the simultaneous determination of the Stokes parameters  $I$ ,  $Q$  and  $U$  in all nine spectral bands.

[70] The RSP has six spectral bands in the visible/near infrared (VNIR) that require four telescopes for the simultaneous measurements of  $I$ ,  $Q$  and  $U$ . There are also two spectral bands in the Short-Wave Infra-Red (SWIR) blue enhanced silicon photodiodes are used to make measurements in six spectral bands at 410, 470, 555, 670, 865 and 960 nm. In the short wave infrared (SWIR) HgCdTe detectors cooled to 150K are used to make measurements in three spectral bands at 1590, 1880 and 2250 nm. The instantaneous field of view (14 mrad) of each telescope is scanned continuously with data being taken over a range of  $120^\circ$  ( $\pm 60^\circ$  from nadir) using a polarization-insensitive scan mirror system. This system consists of two mirrors each used at  $45^\circ$  angle of incidence and with their planes of incidence oriented orthogonally. This ensures that the polarization orientation that is perpendicular to the plane of reflection at the first mirror is parallel to the plane of reflection at the second mirror so that all polarization states are transmitted equally. The RSP also incorporates a calibration system that allows the relative responsivity of the detectors measuring orthogonal polarization states to be tracked allowing a polarimetric accuracy of better than 0.2% to be achieved independent of the scene that is being viewed.

## Appendix B: Assumptions About Noise

[71] The absolute noise level is the same in Stokes parameters  $I$ ,  $Q$  and  $U$  and it is given in reflectance unit by:

$$\sigma_{e,i} = \frac{\sqrt{bR_i\mu_0}}{\mu_0}, \quad (\text{B1})$$

where the coefficient  $b$  is determined from the optical throughput, detector quantum efficiency and preamplifier design primarily and it is verified against measurements. We use a value of  $b$  equal to  $10^{-7}$ , which is a good approximation for the entire bands of the RSP instrument.

[72] The polarization ratio  $P$  is defined by:

$$P_i = \frac{R_{p,i}}{R_i}. \quad (\text{B2})$$

[73] The errors on  $R_p$  then can be written as follows:

$$\Delta R_{p,i} = R_{p,i} \frac{\Delta R_i}{R_i} + \Delta P_i R_i. \quad (\text{B3})$$

[74] From the equation above, we define the measurements errors due to the calibration uncertainty and polarimetric uncertainty as follows:

$$\begin{aligned} \sigma_{cal,i} &= R_{p,i} \frac{\Delta R_i}{R_i}, \\ \sigma_{pol,i} &= \Delta P_i R_i \end{aligned} \quad (\text{B4})$$

where  $\frac{\Delta R_i}{R_i}$  is the relative calibration uncertainty, which is fixed to 3%.  $\Delta P$  is the polarimetric absolute accuracy which is calculated as follows:

$$\Delta P_i = 0.001 + 0.001 P_i. \quad (\text{B5})$$

## Appendix C: Radiometric Calibration of the RSP

[75] The RSP was calibrated on 25 September 2005 using a NIST traceable 1 kW FEL lamp operated in the manner prescribed by NIST so as to provide a calibrated irradiance that was reflected by a Spectralon plaque that also had NIST traceability of its reflectance. The NIST irradiances, that are provided with the FEL lamp at a standard set of wavelengths, were interpolated, using an initial fit to a blackbody spectrum as a method of prewhitening to reduce errors, to the 1-nm spectral grid of the RSP spectral response. These interpolated irradiances were then integrated over the spectral response of each band to produce an integrated estimate of the radiance that is observed by the RSP as the irradiance is reflected off the Spectralon plaque. It is these measurements that define the RSP radiance scale. The RSP irradiances are then converted to a reflectance using a solar spectral irradiance provided by Judith Lean [Lean, 2000] that was also interpolated to the 1-nm grid and integrated over the response of each RSP band. It is this calibration that was used during the smoke measurements in October 2003. An additional calibration was performed using the Raytheon Santa Barbara Remote Sensing SIS2 integrating sphere over the spectral range from 350 to 1050 nm on 8 August 2005. This calibration showed a substantial change in calibration coefficients in the 410, 470 and 555 nm bands compared with that obtained on 25 September 2005. Subsequent analysis of the spectral variation of cloud reflectance, low altitude observations of sun glint and evaluation against the observed and simulated degree of linear polarization (which is independent of radiometric scale) have shown that the large change in calibration coefficients between 25 September 2005 and 8 August 2005 was erroneous and probably caused by errors in the calibration of the SIS2 which is only a tertiary radiance standard. However, it is this discrepancy between the

radiance calibrations that causes us to ascribe a higher uncertainty to the radiometric accuracy of the shorter wavelength bands of the RSP.

[76] **Acknowledgments.** F. Waquet was supported as a postdoctoral fellow at NASA Goddard Institute for Space Studies by the NASA Glory Mission project. The participation of the RSP in ALIVE was funded by the NASA Radiation Sciences Program managed by Hal Maring. We would like to express our thanks to the National Aeronautics and Space Administration's Aerosol Robotic Network (AERONET) that supports and processes Cimel Sun Photometer data. The Cimel data that were used in our validation of ALIVE results were collected by the U.S. Department of Energy as part of the Atmospheric Radiation Measurement (ARM) Program Climate Research Facility (ACRF). The ARM Program is sponsored by the U.S. Department of Energy, Office of Science, Office of Biological and Environmental Research. The success of ALIVE was due to the hard work and dedicated efforts from a large team of scientists and engineers, Sky Research J-31, and Cessna pilots, crew, and support personnel, SGP site personnel, ARM infrastructure support, weather forecasters, and support from Greenwood aviation at Ponca City airport. We thank ARM for the support of this campaign. The flights over smoke in Southern California were funded by the Independent Program Office under the management of Steven Mango as part of the Coastal Stratocumulus Imposed Perturbation Experiment (CSTRIPE), and we acknowledge the assistance of Ron Ferek of the Office of Naval Research, John Seinfeld of California Institute of Technology and William Conant of the University of Arizona in facilitating our participation in CSTRIPE. The Cimel Sun Photometer Rogers Dry Lake, which is part of the AERONET, was used in validating our smoke retrievals. This instrument was mentored by Jeannette van den Bosch of NASA. The NASA GSFC CPL data, for which Matthew McGill is the Principal Investigator, was most informative in understanding the vertical structure of the smoke observations and was provided to us by Dennis Hlavka. Mike Fromm of the Naval Research Laboratory pointed out to us the value of the TOMS AI when looking at smoke from fires and provided the image shown here that was derived from data processed by the NASA GSFC Ozone Processing Team.

## References

- Abdou, W. A., D. J. Diner, J. V. Martonchik, C. J. Bruegge, R. A. Kahn, B. J. Gaitley, K. A. Crean, L. A. Remer, and B. Holben (2005), Comparison of coincident multiangle imaging spectroradiometer and moderate resolution imaging spectroradiometer aerosol optical depths over land and ocean scenes containing aerosol robotic network sites, *J. Geophys. Res.*, **110**, D10S07, doi:10.1029/2004JD004693.
- Ackermann, J. (1998), The extinction-to-backscatter ratio of tropospheric aerosol: A numerical study, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, **15**, 1043–1050.
- Ackerman, T., and G. Stokes (2003), The atmospheric radiation measurement program, *Phys. Today*, **56**, 38–45.
- Barnaba, F., and G. P. Gobbi (2004), Modeling the aerosol extinction versus backscatter relationship for lidar applications: Maritime and continental conditions, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, **21**, 428–442.
- Bodhaine, B., N. B. Wood, E. G. Dutton, and J. R. Slusser (1999), On Rayleigh optical depth calculations, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, **16**, 1854–1861.
- Bréon, F. M., D. Tanré, P. Leconte, and M. Herman (1995), Polarized reflectance of bare soils and vegetation: measurements and models, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **33**, 487–499.
- Cairns, B., L. D. Travis, and E. E. Russell (1997), An analysis of polarization: Ground-based upward looking and aircraft/satellite based downward looking measurements, *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **3220**, 103–114.
- Cairns, B., L. D. Travis, and E. E. Russell (1999), The research scanning polarimeter: Calibration and ground-based measurements, *Proc. SPIE*, **3754**, 186–197.
- Cairns, B., et al. (2001), Aerosol retrievals over land surfaces: The advantages of polarization, paper presented at the AMS Annual Meeting, Albuquerque, NM, January.
- Cattrall, C., J. Reagan, K. Thome, and O. Dubovik (2005), Variability of aerosol and spectral lidar and backscatter and extinction ratios of key aerosol types derived from selected aerosol robotic network locations, *J. Geophys. Res.*, **110**, D10S11, doi:10.1029/2004JD005124.
- Chowdhary, J., B. Cairns, M. I. Mishchenko, and L. D. Travis (2001), Retrieval of aerosol properties over the ocean using multispectral and multiangle photopolarimetric measurements from the research scanning polarimeter, *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 234–246.
- Chowdhary, J., B. Cairns, and L. Travis (2002), Case studies of aerosol retrievals from multiangle, multi-spectral photo-polarimetric remote sensing data, *J. Atmos. Sci.*, **59**, 383–397.

- Chowdhary, J., B. Cairns, and L. D. Travis (2006), Contribution of water-leaving radiances to multiangle, multispectral polarimetric observations over the open oceans: Bio-optical model results for case I waters, *Appl. Opt.*, **45**, 5542–5567.
- Chu, D. A., Y. J. Kaufman, C. Ichoku, L. A. Remer, D. Tanré, and B. N. Holben (2002), Validation of MODIS aerosol optical depth retrieval over land, *Geophys. Res. Lett.*, **22**(12), 8007, doi:10.1029/2001GL013205.
- Chung, S. H., and J. H. Seinfeld (2005), Climate response of direct radiative forcing of anthropogenic black carbon, *J. Geophys. Res.*, **110**, D11102, doi:10.1029/2004JD005441.
- D'Almeida, G. A., P. Koepke, and E. P. Shettle (1991), *Atmospheric Aerosols: Global Climatology and Radiative Characteristics*, 561 pp., A Deepak Publishing, Hampton, VA.
- Deschamps, C., et al. (1994), The POLDER mission: Instrument characteristics and scientific objectives, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **32**, 598–615.
- De Haan, J. F., P. B. Bosma, and J. W. Hovenier (1987), The adding method for multiple scattering calculations of polarized light, *Astron. Astrophys.*, **183**, 371–391.
- Deuzé, C., et al. (2001), Remote sensing of aerosols over land surfaces from POLDER-ADEOS-1 polarized measurements, *J. Geophys. Res.*, **106**, 4913–4926.
- Dubovik, O., and M. D. King (2000), A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from Sun and sky radiance measurements, *J. Geophys. Res.*, **105**, 20,673–20,696.
- Dubovik, O., et al. (2002), Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations, *J. Atmos. Sci.*, **59**, 590–608.
- Elias, T., B. Cairns, and J. Chowdhary (2004), Surface optical properties measured by the airborne research scanning polarimeter during the CLAMS experiment, in *Remote Sensing of Clouds and the Atmosphere VIII*, edited by K. P. Schäfer et al., *Proc. SPIE*, **5235** (#79), pp. 595–606, SPIE, Bellingham, WA.
- Flowerdew, R. J., and J. D. Haigh (1995), An approximation to improve accuracy in the derivation of surface reflectances from multi-look satellite radiometers, *Geophys. Res. Lett.*, **22**, 1693–1696.
- Grant, L., C. S. T. Daughtry, and V. C. Vanderbilt (1993), Polarized and specular reflectance variation with leaf surface features, *Physiol. Plant.*, **88**, 1–9, doi:10.1111/j.1399-3054.tb01753.x.
- Hansen, J. E., and L. D. Travis (1974), Light scattering in planetary atmospheres, *Space Sci. Rev.*, **16**, 527–610.
- Hansen, J., et al. (2005a), Efficacy of climate forcings, *J. Geophys. Res.*, **110**, D18104, doi:10.1029/2005JD005776.
- Hansen, J., et al. (2005b), Earth's energy imbalance: Confirmation and implications, *Science*, **308**(5727), 1431–1435, doi:10.1126/science.1110252.
- Hasekamp, O. P., and J. Landgraf (2007), Retrieval of aerosol properties over land surfaces: Capabilities of multiple-viewing-angle intensity and polarization measurements, *Appl. Opt.*, **46**(16), 3332–3344, doi:10.1364/AO.46.003332.
- Haywood, J. M., and K. P. Shine (1995), The effect of anthropogenic sulfate and soot on the clear-sky planetary radiation budget, *Geophys. Res. Lett.*, **22**, 603–606.
- Herman, J. R., P. Bhartia, O. Torres, C. Hsu, C. Seftor, and E. Celarier (1997), Global distribution of UV-absorbing aerosol from Nimbus-7/TOMS data, *J. Geophys. Res.*, **102**, 16,911–16,922.
- Hlavka, D., S. P. Palm, W. D. Hart, J. D. Spinhirne, M. J. McGill, and E. J. Welton (2005), Aerosol and cloud optical depth from GLAS: Results and verification for an October 2003 California fire smoke case, *Geophys. Res. Lett.*, **32**, L22S07, doi:10.1029/2005GL023413.
- Hoff, R. M., S. P. Palm, J. A. Engel-Cox, and J. D. Spinhirne (2005), GLAS long-range transport observation of the 2003 California forest fire plumes to the northeast US, *Geophys. Res. Lett.*, **32**, L22S08, doi:10.1029/2005GL023723.
- Hsu, N. C., S.-C. Tsay, M. D. King, and J. R. Herman (2004), Aerosol properties over bright-reflecting source regions, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **42**(3), 557–559, doi:10.1109/TGRS.2004.824067.
- Intergovernmental Panel on Climate Change 2007, et al. (2007), Changes in atmospheric constituents and in radiative forcing, in *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, edited by S. Solomon et al., pp. 129–234, Cambridge Univ. Press, Cambridge, U.K.
- Kaufman, Y. J., D. Tanre, T. Nakajima, J. Lenoble, R. Frouin, H. Grassl, B. M. Herman, M. D. King, and P. M. Teillet (1997a), Passive remote sensing of tropospheric aerosol and atmospheric correction for the aerosol effect, *J. Geophys. Res.*, **102**, 16,815–16,830.
- Kaufman, Y. J., et al. (1997b), The MODIS 2.1  $\mu\text{m}$  channel—Correlation with visible reflectance for use in remote sensing of aerosol, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **35**, 1286–1298.
- Kaufman, Y. J., N. Gobron, B. Pinty, J.-L. Wildowski, and M. M. Verstraete (2002), Relationship between surface reflectance in the visible and mid-IR used in MODIS aerosol algorithm: Theory, *Geophys. Res. Lett.*, **29**(3), 2116, doi:10.1029/2001GL014492.
- Kahn, R., P. Banerjee, and D. McDonald (2001), Sensitivity of multi-angle imaging to natural mixtures of aerosols over ocean, *J. Geophys. Res.*, **106**, 18,219–18,238.
- Kahn, R. A., B. J. Gaitley, J. V. Martonchik, D. J. Diner, K. A. Crean, and B. Holben (2005), Multiangle imaging spectroradiometer (MISR) global aerosol optical depth validation based on 2 years of coincident aerosol robotic network (AERONET) observations, *J. Geophys. Res.*, **110**, D10S04, doi:10.1029/2004JD004706.
- Keeley, J. E. (2004), Fire management of California shrubland landscapes: Lessons from the October 2003 wildfires in Southern California, *J. For.*, **102**(7), 26–31, doi:10.1007/s00267-001-0034-Y.
- King, M. D., et al. (1978), Aerosol size distributions obtained by inversion of spectral optical depth measurements, *J. Atmos. Sci.*, **35**, 2153–2167.
- Lacis, A. A., and V. Oinas (1991), A description of the correlated k distribution method for modeling nongray gaseous absorption, thermal emission and multiple scattering in vertically inhomogeneous atmospheres, *J. Geophys. Res.*, **96**, 9027–9063.
- Lean, J. (2000), Evolution of the Sun's spectral irradiance since the Maund minimum, *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 2425–2428.
- Lebsack, M. D., T. S. L'Ecuyer, and G. L. Stephens (2007), Information content of near-infrared spaceborne multiangular polarization measurements for aerosol retrieval, *J. Geophys. Res.*, **112**, D14206, doi:10.1029/2007JD008535.
- Lohmann, U., and J. Feichter (2005), Global indirect aerosol effects: A review, *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 715–737, 2005, <http://www.atmos-chem-phys.net/5/715/2005/>.
- Martonchik, J., et al. (1998), Techniques for the retrieval of aerosol properties over land and ocean using multiangle imaging, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **36**, 1212–1227.
- Martonchik, J. V., D. J. Diner, K. A. Crean, and M. A. Bull (2002), Regional aerosol retrieval results from MISR, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **40**, 1520–1531.
- Martonchik, J. V., D. J. Diner, R. Kahn, B. Gaitley, and B. N. Holben (2004), Comparison of MISR and AERONET aerosol optical depths over desert sites, *Geophys. Res. Lett.*, **31**, L16102, doi:10.1029/2004GL019807.
- Mishchenko, M. I., and L. D. Travis (1997a), Satellite retrieval of aerosol properties over the ocean using measurements of reflected sunlight: Effect of instrumental errors and aerosol absorption, *J. Geophys. Res.*, **102**, 13,543–13,553.
- Mishchenko, M. I., and L. D. Travis (1997b), Satellite retrieval of aerosol properties over the ocean using polarization as well as intensity of reflected sunlight, *J. Geophys. Res.*, **102**, 16,989–17,013.
- Mishchenko, M. I., L. D. Travis, and A. A. Lacis (2002), *Scattering, Absorption and Emission of Light by Small Particles*, Cambridge Univ. Press, Cambridge.
- Mishchenko, M. I., B. Cairns, J. E. Hansen, L. D. Travis, R. Burg, Y. J. Kaufman, J. V. Martins, and E. P. Shettle (2004), Monitoring of aerosol forcing of climate from space: analysis of measurement requirements, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer.*, **88**, 149–161, doi:10.1016/j.jqsrt.2004.03030.
- Mishchenko, M. I., et al. (2007), Precise and accurate monitoring of terrestrial aerosols and total solar irradiance: Introducing the Glory mission, *Bull. Amer. Meteorol. Soc.*, **88**, 677–691, doi:10.1175/BAMS-88-5-677.
- Mühle, J., T. J. Lueker, Y. Su, B. R. Miller, K. A. Prather, and R. F. Weiss (2007), Trace gas and particulate emissions from the 2003 southern California wildfires, *J. Geophys. Res.*, **112**, D03307, doi:10.1029/2006JD007350.
- Nadal, F., and F. M. Bréon (1999), Parameterization of surface polarized reflectances derived from POLDER spaceborne measurements, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **37**, 1709–1719.
- North, P. R. J. (2002), Estimation of aerosol opacity and land surface bidirectional reflectance from ATSR-2 dual-angle imagery: Operational method and validation, *J. Geophys. Res.*, **107**(D12), 4149, doi:10.1029/2000JD000207.
- Pollack, J. B., O. B. Toon, and B. N. Khare (1973), Surface refractive index, *Icarus*, **19**, 372–389.
- Ramanathan, V., et al. (2001), Aerosols, climate, and the hydrological cycle, *Science*, **294**, 2119–2124.
- Remer, L. A., et al. (2005), The MODIS aerosol algorithm, products and validation, *J. Atmos. Sci.*, **62**, 947–973.
- Rodgers, C. D. (2000), *Inverse Methods for Atmospheric Sounding*, 238 pp., World Sci., Hackensack, N. J.
- Rosenzweig, C., et al. (2008), Attributing physical and biological impacts to anthropogenic climate change, *Nature*, **453**, 353–357, doi:10.1038/nature06937.
- Russell, P. B., J. M. Livingston, P. Hignett, S. Kinne, J. Wong, A. Chien, R. Bergstrom, P. Durkee, and P. V. Hobbs (1999), Aerosol-induced

- radiative flux changes off the United States mid-Atlantic coast: Comparison of values calculated from sunphotometer and in situ data with those measured by airborne pyranometer, *J. Geophys. Res.*, **104**, 2289–2307.
- Schmid, B., et al. (1997), Retrieval of optical depth and particle size distributions of tropospheric and stratospheric aerosols by means of sun photometry, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **35**, 172–181.
- Schmid, B., et al. (2003), Column closure studies of lower tropospheric aerosol and water vapor during ACE-Asia using airborne Sun photometer and airborne in situ and ship-based lidar measurements, *J. Geophys. Res.*, **108**(D23), 8656, doi:10.1029/2002JD003361.
- Stamnes, K., W. Li, B. Yan, H. Eide, A. Barnard, W. S. Pegau, and J. J. Stamnes (2003), Accurate and self-consistent ocean color algorithm: Simultaneous retrieval of aerosol optical properties and chlorophyll concentrations, *Appl. Opt.*, **42**, 939–951.
- Tanré, D., M. Herman, and Y. J. Kaufman (1996), Information on aerosol size distribution contained in solar reflected radiances, *J. Geophys. Res.*, **101**, 19,043–19,060.
- Torres, O., P. K. Bhartia, J. R. Herman, Z. Ahmad, and J. Gleason (1998), Derivation of aerosol properties from satellite measurements of backscattered ultraviolet radiation: Theoretical basis, *J. Geophys. Res.*, **103**, 17,099–17,110.
- Torres, O., P. K. Bhartia, J. R. Herman, A. Sinyuk, P. Ginoux, and B. Holben (2002), A long-term record of aerosol optical depth from TOMS observations and comparison to AERONET measurements, *J. Atmos. Sci.*, **59**, 398–413.
- Veefkind, J. P., G. D. de Leeuw, and P. A. Durkee (1998), Retrieval of aerosol optical depth over land using two-angle view satellite radiometry during TARFOX, *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 3135–3138.
- Waquet, F., P. Goloub, J.-L. Deuzé, J.-F. Léon, F. Auriol, C. Verwaerde, J.-Y. Balois, and P. François (2007), Aerosol retrieval over land using a multiband polarimeter and comparison with path radiance method, *J. Geophys. Res.*, **112**, D11214, doi:10.1029/2006JD008029.
- Zagolski, F., N. T. O'Neill, A. Royer, and J. R. Miller (1999), Validation of a DDV-based aerosol optical depth retrieval algorithm using multialtitude spectral imagery, *J. Geophys. Res.*, **104**, 27,959–27,971.
- 
- B. Cairns, M. I. Mishchenko, and L. D. Travis, NASA Goddard Institute for Space Studies, 2880 Broadway, New York, NY 10025, USA.
- J. Chowdhary and K. Knobelspiesse, Department of Applied Physics and Applied Mathematics, Columbia University, 2880 Broadway, New York, NY 10025, USA.
- B. Schmid, Pacific Northwest National Laboratory, 902 Battelle Boulevard, P.O. Box 999, MSIN K9-24, Richland, WA 99352, USA.
- F. Waquet, Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Université des Sciences et Technologies de Lille, F-59655 Villeneuve d'Ascq, France. (waquet@loa.univ-lille1.fr)

## Aerosol Remote Sensing over Clouds Using A-Train Observations

F. WAQUET, J. RIEDI, L. C. LABONNOTE, AND P. GOLOUB

*Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Université des Sciences et Technologies de Lille, Villeneuve-d'Ascq, France*

B. CAIRNS

*NASA Goddard Institute for Space Studies, New York, New York*

J.-L. DEUZÉ AND D. TANRÉ

*Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Université des Sciences et Technologies de Lille, Villeneuve-d'Ascq, France*

(Manuscript received 3 December 2008, in final form 2 March 2009)

### ABSTRACT

The detection of aerosol above clouds is critical for the estimate of both the aerosol and cloud radiative impacts. In this study, the authors present a new method to retrieve the aerosol properties over clouds that uses the multiangle polarization measurements of the Polarization and Directionality of Earth Reflectances (POLDER)–Polarization and Anisotropy of Reflectances for Atmospheric Sciences Coupled with Observations from a Lidar (PARASOL) instrument. The method is illustrated and applied to a case study exploiting the coincident observations from other passive and active sensors of the NASA A-Train satellite constellation. The case study is relative to an elevated biomass burning aerosol layer that originates from southern Africa and is then transported over low-level clouds extending over the Atlantic Ocean. It is shown that the comparison between the cloud-top heights retrieved with the different passive techniques developed for the A-Train sensors can be used to detect the presence of aerosols above clouds. The analysis of the PARASOL observations showed that the aerosols significantly affect the polarized light reflected by the clouds over the 80°–120° scattering angle range and in the rainbow region. A single scattering model permitted the reproduction of the polarization observations and the retrieval of an estimate of the aerosol layer optical thickness of 0.225 at 0.865  $\mu\text{m}$ . The retrieved aerosol optical thicknesses over clouds agree quantitatively with the closest ones retrieved over clear-sky ocean ( $\pm 0.04$  as a maximum departure), demonstrating the value of the method. This innovative technique based solely on passive measurements is expected to provide a better understanding of aerosol properties in regions where significant cloud cover usually prevents the retrieval of aerosol optical thickness. As such, this new retrieval method can provide significant and valuable information about the radiative impact of clouds and aerosols, especially where they can potentially interact strongly with each other.

### 1. Introduction

Aerosol particles affect the climate of the earth directly by scattering and absorbing solar radiation and indirectly by affecting cloud microphysical properties (Bréon et al. 2002) and cloud lifetime. Although their net radiative effect may compensate for increases in the effects of greenhouse gases, the current magnitude and even the regional sign of their net effect remains un-

certain (Forster et al. 2007). The constellation of National Aeronautics and Space Administration (NASA) satellites called the A-Train includes passive and active sensors specifically dedicated to the study of aerosol and cloud properties from a three-dimensional perspective, exploiting simultaneous and collocated multi-sensor observations (Stephens et al. 2002). Among these instruments, the Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) and the Polarization and Anisotropy of Reflectances for Atmospheric Sciences Coupled with Observations from a Lidar (PARASOL) instrument take advantage respectively of multispectral measurements (0.41–14.2  $\mu\text{m}$ ) and spectral (0.44–0.865  $\mu\text{m}$ ) multidirectional and polarized passive measurements to

Corresponding author address: Dr. Fabien Waquet, LOA, UFR de Physique, Bât P5, USTL, Villeneuve-d'Ascq, CEDEX F-59655, France.  
E-mail: waquet@loa.univ-lille1.fr

derive aerosol and cloud parameters on a global scale. The main aerosol parameters currently estimated from these measurements are the aerosol optical thickness (AOT) over both ocean (Tanré et al. 1997; Herman et al. 2005) and land (Kaufman et al. 1997; Deuzé et al. 2001; Hsu et al. 2004) and the particle size over ocean. For clouds, the current passive retrieval techniques provide, among other parameters, the cloud optical thickness, the thermodynamic phase (i.e., liquid or ice), the cloud particle size, and a number of different estimates of the cloud-top pressure (Parol et al. 1999; Platnick et al. 2003). Another interesting instrument is the Cloud–Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization (CALIOP), which provides active measurements at  $0.532\text{ }\mu\text{m}$  that are primarily used to determine the vertical structure of the atmosphere along the A-Train orbit track (Winker et al. 2004).

The determination of the atmospheric vertical structure, and particularly the organization of cloud and aerosol layers, is critical for the estimate of aerosol and cloud radiative impacts and for understanding their complex interactions. Biomass burning particles are usually injected into the atmosphere at high altitudes and can be transported over considerable distance and overlie low-level clouds (Cattani et al. 2006). Transport of mineral dust particles was also observed over clouds (De Graaf et al. 2007), although not so frequently. Recent studies have shown that the presence of aerosols above clouds affects the retrieval of cloud properties and the estimation of the indirect effect (Cattani et al. 2006). Biomass burning aerosols are usually strongly absorbing (Dubovik et al. 2002) and may therefore reduce the cloud albedo effect, causing a local positive radiative forcing. This latter process is not currently well understood and explains the large uncertainties associated with the estimation of the direct forcing by biomass burning particles (Forster et al. 2007).

Most of the current aerosol retrieval algorithms are restricted to cloud-free scenes, which strongly reduces our ability to monitor the aerosol properties at a global scale and thus limits the possibility of improving our knowledge of aerosol–cloud interactions. Active sensors constitute an obvious and well-defined observational approach to the detection of aerosols above bright clouds. However, current active sensors, and particularly the spaceborne instruments, have limited capabilities to accurately estimate the total aerosol burden without some available prior knowledge of the aerosol microphysics (Ackermann 1998; Cattrall et al. 2005); this is especially true during daytime because of increasing noise in the data (Kim et al. 2008). Furthermore, the better spatial coverage of passive sensors provides a clear advantage over active sensors in terms of sampling events when aerosol layers

are above clouds, justifying the need for the development of passive remote sensing techniques that can provide qualitative (detection) and quantitative information about aerosol properties over cloud layers. A method based on the use of passive measurements acquired in a broad spectral range ( $0.28\text{--}1.75\text{ }\mu\text{m}$ ) by the Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography (SCIAMACHY) instrument has been recently developed and allows us to detect UV-absorbing aerosols in cloud-contaminated scenes (De Graaf et al. 2007). The proposed method allows us to detect the absorbing particles using an aerosol index and provides an estimate of aerosol optical thickness and single scattering albedo, under some assumptions made about aerosol and cloud microphysical properties. In this study, we describe an original method of aerosol characterization over clouds, based on the use of A-train observations. The technique used to detect the presence of aerosols above the clouds relies on the comparison of cloud-top heights retrieved with the different passive techniques developed for the A-train sensors. The aerosol retrieval algorithm is solely based on the use of multiangle polarization measurements in the visible and near-infrared wavelengths from the Polarization and Directionality of Earth Reflectances (POLDER)–PARASOL instruments. The proposed algorithm allows retrieving the aerosol optical thickness and a parameter indicative of particle size. Furthermore, this algorithm has the advantage of being only weakly sensitive to the microphysical properties of the clouds located below the aerosol layer. This innovative method is illustrated and applied to a case study exploiting the coincident observations from other passive and active sensors of the A-Train satellite constellation. In the next section, we present a case study of a layer of particles from biomass burning observed over low-level clouds and the A-Train observations allowing its detection. The third section is dedicated to the interpretation of the polarized observations and presents a simple method used to retrieve the AOT. The fourth section presents some examples of aerosol retrievals performed above clouds. The last section summarizes the results and concludes by discussing the interesting perspectives opened by this innovative technique for the study of cloud and aerosol interactions.

## 2. Analysis of an aerosol transport case study

An episode of biomass burning aerosol transport from southwest Africa to the Atlantic Ocean was analyzed using simultaneous and collocated POLDER–PARASOL, MODIS, and CALIOP observations. The analysis of the case study, conducted during 14–18 August 2006, allowed

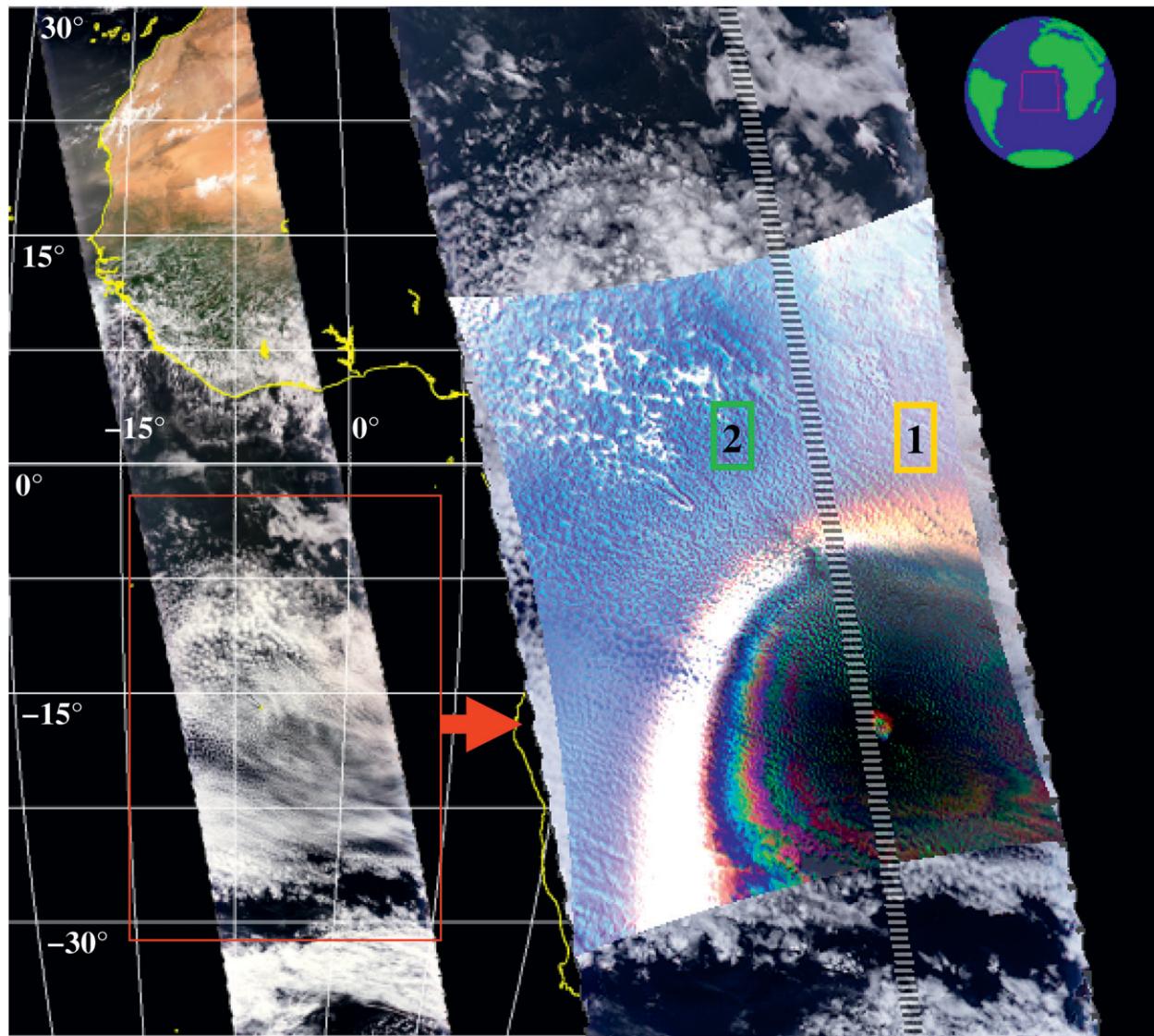


FIG. 1. Red–green–blue (RGB) composites relative to 1400 UTC 18 Aug 2006 POLDER/PARASOL measurements in (left) total radiance and (right) polarized radiance for the area in the red box. The dashed line on the right RGB composite represents the CALIOP orbit track. The yellow and green boxes correspond respectively to areas with and without aerosol above the clouds. On the RGB composite with polarized radiances, note the primary rainbow feature, typically observed in presence of water clouds, which is darkened in the upper east part of the image because of the presence of aerosol above the cloud top.

us to identify a methodology for detecting the presence of an aerosol layer above cloud top and estimating the corresponding AOT value. The quantities used to derive the aerosol and cloud properties from POLDER are the total and polarized normalized radiance (unitless) as defined in Herman et al. (2005). Throughout the rest of the paper, when we discuss radiances, we will be referring to these normalized quantities. Figure 1 (left) is a true color composite image illustrating PARASOL total radiance observations on 18 August 2006 over western Africa and the Atlantic Ocean. The red box de-

limits the cloudy area investigated in the paper. Figure 1 (right) is a false color composite image combining polarized radiances at 0.490, 0.670, and  $0.865\text{ }\mu\text{m}$  for the selected area. The CALIOP orbit track is illustrated in Fig. 1 (right) and the corresponding atmospheric vertical features derived from CALIOP observations are shown in Fig. 2 along with the different coincident POLDER and MODIS retrievals of cloud-top pressure. The aerosol and cloud layers shown in Fig. 2 can be discriminated from each other based on the amplitude and spectral behavior of the lidar signal measured in two

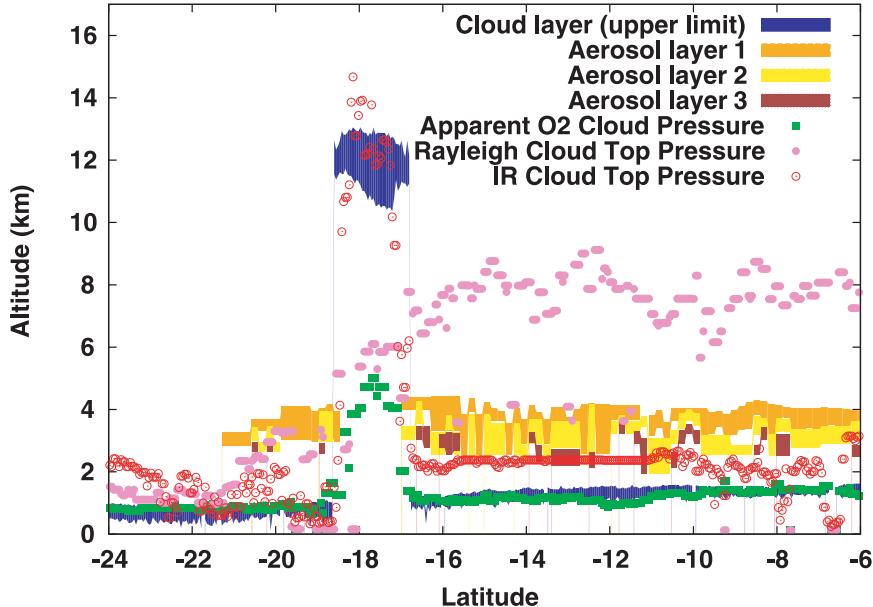


FIG. 2. Cloud and aerosol layer structures derived from the CALIOP measurements as a function of latitude (solid lines). Cloud-top heights are retrieved using different passive remote sensing techniques (dots). The corresponding CALIOP orbit track is shown in Fig. 1.

spectral bands and using an adaptive threshold technique (Vaughan et al. 2004). The CALIOP atmospheric features correspond to a product at 5-km resolution (CLAY5KM and ALAY5KM; Vaughan et al. 2004). The MODIS cloud pressure has been extracted from the MOD06 cloud product, which provides data at a resolution of  $5\text{ km} \times 5\text{ km}$  (Platnick et al. 2003); the POLDER data correspond to the radiative budget level 2 (RB2) cloud products given at a pixel resolution of  $18.5\text{ km} \times 18.5\text{ km}$  (Parol et al. 2004). For the comparison shown in Fig. 2, we selected the POLDER and MODIS pixels whose centers are the closest to those of the CALIOP pixels.

Figure 2 shows an aerosol layer located between 2 and 4 km above low-level clouds with cloud-top heights varying between 0.7 and 1.3 km. A cirrus cloud is observed between latitudes  $-16.5^\circ$  and  $-19.5^\circ$  above the low cloud layer. The heights of the low-level cloud base are not derived by CALIOP, which indicates that the measurements were acquired under thick cloud conditions (Kim et al. 2008). The origin of the aerosols observed between 2 and 4 km was inferred using back trajectories from the National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory (HYSPLIT) model and the AOT retrieved by PARASOL. The aerosol layer originated from the biomass fires that occur annually in southern Africa between August and September (Tanré et al. 2001). Biomass burning particles mainly contribute to the AOT of

the aerosol fine mode, which is associated with particles smaller than  $0.6\text{ }\mu\text{m}$  in size (Dubovik et al. 2002). During the 14–18 August time period, the largest fine-mode AOTs ( $>0.3$  at  $0.865\text{ }\mu\text{m}$ ) were observed in western Congo and north of Angola (see Fig. 6a for latitude  $>-14^\circ$  and longitude  $<20^\circ$ ). The biomass burning particles were transported over the course of three or four days over the African continent and then over the Atlantic Ocean (see Fig. 6a), prior to their detection above the clouds on 18 August. The back trajectories also suggest that the biomass burning particles were located within the boundary layer in the source regions (altitudes  $<1.5\text{ km}$ ) and were rapidly lifted over the African continent and then transported at an almost constant altitude.

The presence of the aerosol layer above the clouds was initially detected by its perturbing effects on the cloud-top pressure estimated from passive observations. We reported in Fig. 2 the uppermost cloud-top height,  $z_c$ , determined from CALIOP, along with altitude derived from (i) the “Rayleigh cloud-top pressure” method ( $z_{c\_Rayleigh}$ ), which is based on the use of spectral polarized radiance measurements (Goloub et al. 1994); (ii) the “apparent O<sub>2</sub> cloud pressure” method ( $z_{c\_O_2}$ ), which uses differential absorption measurements in the oxygen A-band (Vanbauce et al. 2003); and (iii) the “IR cloud-top pressure” method ( $z_{c\_IR}$ ), which uses MODIS measurements acquired in the thermal infrared (Menzel et al. 2006). Figure 2 shows for latitudes lower than  $22^\circ$ , where no aerosol layers over clouds were detected, the

differences between these methods typically observed in the case of a single low-level cloud. We usually observe small departures that are due to the respective sensitivity of each method to cloud-top height (i.e.,  $z_c\text{IR} > z_c\text{Rayleigh} > z_c\text{O}_2$ ). The differences are expected to increase in the case of multiple cloud layers, as shown between latitudes  $-16.5^\circ$  and  $-19.5^\circ$ . In the case of aerosols above clouds, we observe a nontypical behavior ( $z_c\text{Rayleigh} \gg z_c\text{IR} > z_c\text{O}_2$ ) as the cloud-top height estimated with the "Rayleigh" method is significantly larger than the ones derived with the two other techniques. The comparison between the CALIOP observations and the cloud-top height passive retrievals clearly shows that the Rayleigh technique is affected by the presence of aerosols above the clouds. It also shows that the " $\text{O}_2$ " technique is not strongly perturbed and still allows the cloud-top height to be estimated with an accuracy of  $\pm 350$  m, at least for this case study. We also compared the cloud-top heights retrieved with the different passive techniques for the entire cloudy area selected in Fig. 1. We observed anomalies in the cloud-top heights due to aerosols ( $z_c\text{Rayleigh} \gg z_c\text{IR} > z_c\text{O}_2$ ), such as the ones observed along the CALIOP track or even larger, in the western part of the cloudy areas, and to a lesser extent, over their northern and northeastern parts. As shown later (see Fig. 6b), these areas correspond to regions where our algorithm retrieves significant loads of aerosols above the clouds ( $\text{AOT} > 0.15$  at  $0.87 \mu\text{m}$ ). This confirms that the comparison of the different cloud-top heights can be used to detect the presence of aerosols above the clouds without using an elaborate retrieval approach.

The presence of aerosols above the clouds can be also detected by using only the polarized radiance measurements. Figure 1 (right) shows the primary rainbow, which corresponds to an intense polarized signal that appears almost spectrally neutral (white circular structure). This is a feature typically observed in polarization for liquid clouds at a scattering angle of around  $140^\circ$  from the incident direct solar beam (Goloub et al. 2000). Figure 1 (right) shows that the primary rainbow is darkened and turns brown in the upper east part of the image because of the presence of aerosols above the clouds. This is explained by the fact that aerosols attenuate the signal reflected by cloud in the rainbow region. Because the observed particles are associated with a spectrally dependent AOT (i.e., fine-mode particles), they affect the rainbow differently as a function of the wavelength. To further investigate the effects of aerosols above clouds on the polarized radiance measurements, we segregated PARASOL measurements into two small boxes of about 200 km per 100 km and made use of the multiangular capabilities of PARASOL for each box. Box 1 corresponds to an area where aer-

osols were detected above the clouds (i.e.,  $z_c\text{Rayleigh} \gg z_c\text{IR} > z_c\text{O}_2$ ), whereas box 2 corresponds to an unpolluted cloudy area. Figure 3 shows the polarized radiances measured by PARASOL at 865 nm for each box in Fig. 1 (right) as a function of the scattering angle. The curve in Fig. 3a (blue symbols) shows the angular polarized signature typically observed for water clouds, which is characterized by a strong maximum around  $140^\circ$  (primary rainbow) and small polarized reflectance values over the  $90^\circ$ – $120^\circ$  range (Goloub et al. 2000). The curve in Fig. 3b (red symbols) highlights an abnormal angular polarized signature for a water cloud, with larger polarized reflectance values over the  $90^\circ$ – $120^\circ$  range and smaller polarized reflectance values in the primary rainbow peak. The additional polarization signal corresponds to the polarized radiance generated by aerosols located above the clouds.

### 3. Retrieval method: Modeling and inversion

Single scattering approximations have been commonly used to model the polarized light reflected by the atmosphere–surface system of the earth (Bréon and Goloub 1998; Deuzé et al. 2001). Following these previous studies, we model the polarized radiance emerging from a plane-parallel system constituted by an atmosphere above a thick cloud (cloud optical thickness  $> 5$ ) by considering only the single scattering by molecules and aerosols and only one interaction between atmosphere and cloud. The polarized radiance  $Lp_\lambda$  emerging from such a system can be written as

$$Lp_\lambda(\theta_s, \theta_v, \varphi_r) = \frac{q^m(\Theta)\tau_\lambda^m}{4\mu_v} + \frac{\omega_{0\lambda}^a q_\lambda^a(\Theta)\tau_\lambda^a}{4\mu_v} \exp(-m\gamma\tau_\lambda^m) + Lp_\lambda^c(\theta_s, \theta_v, \varphi_r) \exp[-m(\gamma\tau_\lambda^m + \beta\tau_\lambda^a)], \quad (1)$$

where  $\mu_s$  and  $\mu_v$  are the cosines of the solar zenith angle  $\theta_s$  and the view zenith angle  $\theta_v$ , respectively;  $\varphi_r$  is the relative azimuth angle,  $m$  is the so-called "air mass" factor ( $m = \mu_s^{-1} + \mu_v^{-1}$ ), and  $\Theta$  is the scattering angle. Also,  $\lambda$  denotes a quantity that depends on the wavelength, and  $q^m$  is the polarized phase function for molecules that includes the effects of the depolarization of air:

$$q^m(\Theta) = 0.96 \frac{3}{4}(1 - \cos^2\Theta), \quad (2)$$

where  $\tau_\lambda^m$  is the molecular optical thickness above the cloud, which is given by

$$\tau_\lambda^m = \tau_{\lambda\text{tot}}^{m\text{-tot}} \exp\left(-\frac{z_c}{8}\right), \quad (3)$$

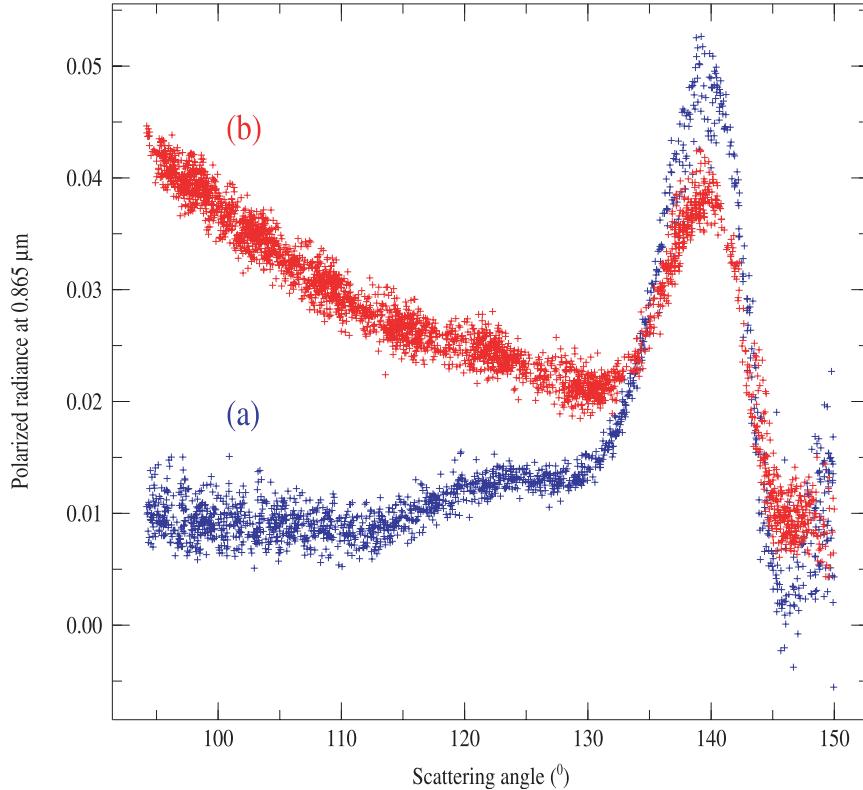


FIG. 3. Polarized radiances measured by PARASOL at  $0.865\text{ }\mu\text{m}$  as a function of the scattering angle for the two boxes shown in Fig. 1 (right): (a) blue symbols represent the radiances relative to box 2, where only low clouds are present; (b) red symbols represent the data of box 1, where a significant load of biomass burning was detected above the clouds.

where  $\tau_{\lambda}^{m\text{-tot}}$  is the total molecular optical thickness at  $\lambda$  (Hansen and Travis 1974),  $\tau_{\lambda}^a$  is the optical thickness of the aerosol above the cloud, and  $\omega_{0,\lambda}^a$  and  $q_{\lambda}^a$  are respectively the aerosol single scattering albedo and the aerosol polarized phase function (i.e., the F12 component of the scattering phase matrix). The aerosol optical properties are calculated using Mie theory. Also,  $L_{p\lambda}^c$  is the polarized radiance reflected by the cloud; the  $\gamma$  and  $\beta$  coefficients account for diffuse transmission of light by aerosols and molecules, which reduces their screening effect on the radiation (Bréon et al. 1995). These coefficients are empirically derived following Lafrance (1997);  $\gamma$  is equal to 0.9 and  $\beta$  varies between 0.3 and 0.6 depending on the aerosol model.

Figure 4 shows polarized radiances calculated at  $0.67\text{ }\mu\text{m}$  with an adding/doubling radiative transfer code (De Haan et al. 1987) and those computed with Eq. (1) for an atmosphere constituted by a thick liquid cloud with and without aerosols above the cloud. The adding/doubling radiative transfer code allows the multiple scattering properties of any atmosphere to be calculated. The atmosphere is described as a juxtaposition of infinite plane-parallel layers, each layer being defined

by the vertical distribution of scatterers and their scattering properties. The scattering properties and vertical distribution of Rayleigh scattering are defined as in Eqs. (2) and (3). The clouds and aerosols particles are homogeneously distributed respectively throughout the first lowest kilometer of the atmosphere and between 1 and 3 km. The scattering properties of the clouds and aerosols particles are calculated using the Mie theory. The liquid water droplet model consists of a gamma size distribution (Deirmendjian 1969), with an effective radius of  $10.0\text{ }\mu\text{m}$  and effective variance of 0.1. The aerosol model consists of spherical small particles described by a single lognormal size distribution with effective radius of  $0.149\text{ }\mu\text{m}$  and effective variance of 0.175. The complex refractive index of the aerosol is fixed to  $1.47 - 0.01i$ . The simulations confirm the polarized features observed by PARASOL in the case of cloudy scenes polluted by a fine aerosol mode (i.e., attenuated cloud bow and large  $L_p$  values over the  $80^\circ$ – $120^\circ$  range). Fine-mode particles typically show large polarized phase function values for scattering angles between  $80^\circ$  and  $120^\circ$  (see Fig. 1 in Waquet et al. 2007). This feature explains why the polarized radiance

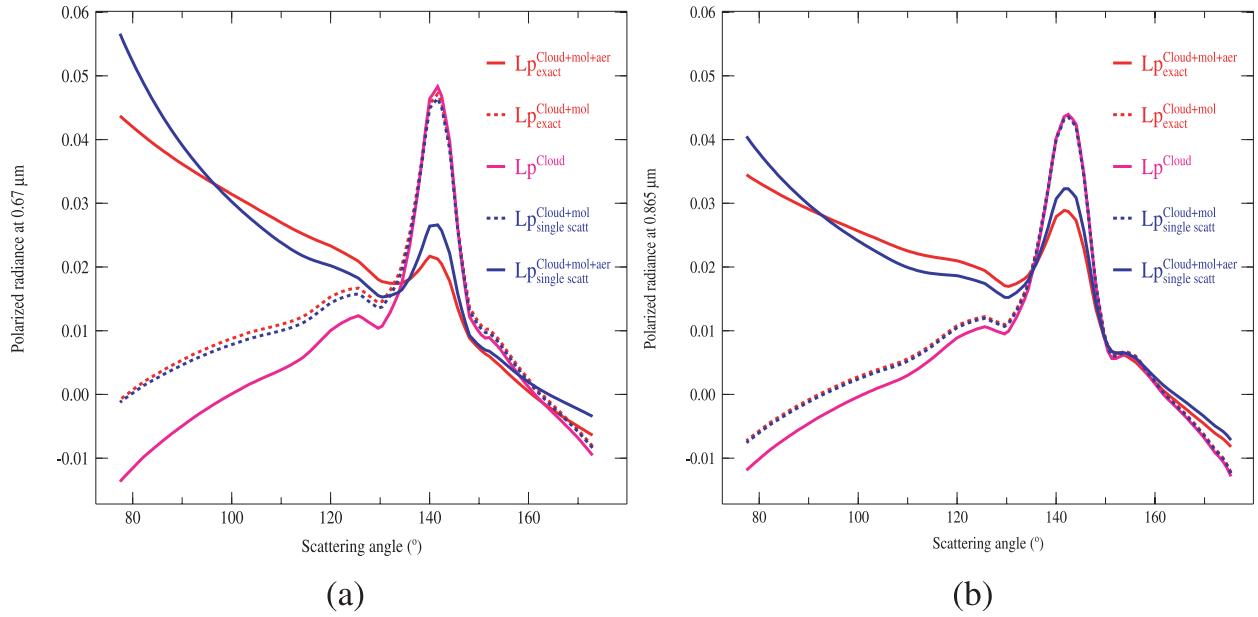


FIG. 4. (a) Polarized radiances simulated at  $0.67\ \mu\text{m}$  with the adding/doubling radiative transfer code by De Haan et al. (1987) for an atmosphere composed of a thick liquid cloud with an aerosol layer above the cloud top (solid red line), without the aerosol (dashed red line), and for the cloud alone (magenta line) as a function of the scattering angle. Blue curves represent the polarized radiances computed with Eq. (1) (single-scattering approximation) for the liquid cloud with (solid blue line) and without the aerosol layer (dashed blue line). (b) As in (a), but for calculations made at  $0.865\ \mu\text{m}$ . In both (a) and (b),  $\theta_s = 50^\circ$ ,  $\varphi_s - \varphi_v = 0^\circ$ ,  $\tau_a = 0.5$  at  $0.67\ \mu\text{m}$ ,  $r_{\text{eff}} = 0.149\ \mu\text{m}$ ,  $v_{\text{eff}} = 0.1735$ ,  $m_r = 1.47 - 0.01i$ ,  $r_{\text{eff}}^c = 10\ \mu\text{m}$ , and  $v_{\text{eff}}^c = 0.1$ , for a cloud extended between 0 and 1 km.

at side scattering angles increases as the aerosol optical thickness increases [see the second term of Eq. (1)]. In the rainbow region, aerosol particles polarize much less than cloud particles. Therefore, the aerosol layer primarily attenuates the clouds' contribution to the polarized signal in this region [see the third term of Eq. (1)]. Moreover, the cloud bow's attenuation depends on molecules and aerosol amount above the cloud, and so it is stronger as the wavelength decreases. This explains why the cloud bow appears much more attenuated in Fig. 4a than in Fig. 4b (see red solid lines); the aerosol optical thickness for a fine-mode aerosol is significantly larger at  $0.67\ \mu\text{m}$  than at  $0.87\ \mu\text{m}$ . Our simple model provides a reasonable fit to the reference model calculations. However, in the case of aerosols above the cloud (AOT of 0.5 at  $0.670\ \mu\text{m}$ ), the model significantly overestimates the signal at lower scattering angles ( $<90^\circ$ ) and in the primary rainbow region ( $\approx 140^\circ$ ) and underestimates the signal over the  $110^\circ$ – $130^\circ$  range. Additional calculations show that these errors are mainly due to inaccurate modeling of the diffuse interactions between the cloud and the free atmosphere (Waquet et al. 2009). The presence of aerosols above the clouds is primarily responsible for the increase in the diffuse cloud–atmosphere interactions. In case of aerosols above the clouds, there is a larger amount of diffuse light that reaches the clouds because aerosols have larger forward

scattering properties than molecules. The polarized light reflected by the cloud is preferentially scattered by the aerosols in the forward scattering direction, which also tends to increase the contribution of diffuse cloud–atmosphere interactions to the radiation field emerging at TOA. The importance of such processes increases with decreasing wavelength; for this reason, the retrieval method described here is limited to the use of the polarized radiances measured at  $0.670$  and  $0.865\ \mu\text{m}$ .

Simulations show that the polarized radiance reflected by a cloud is saturated for cloud optical thickness larger than 3 (Goloub et al. 2000). This means that the quantity  $L_{p\lambda}^c$  in Eq. (1) only depends on the cloud droplet effective radius and variance as long as the cloud is thick enough for the polarization signal to saturate. The sensitivity of  $L_{p\lambda}^c$  to the cloud droplet effective radius is rather small for scattering angles lower than  $130^\circ$  whereas the sensitivity to the effective variance only appears for angles larger than  $145^\circ$  (see Figs. 1 and 2 in Goloub et al. 2000). In our retrieval approach, this quantity is precomputed for a set of viewing geometries ( $\theta_s$ ,  $\theta_v$ ,  $\varphi_r$ ) using a multiple scattering code (Deuzé et al. 1989) and is interpolated to the sensor viewing geometry. We consider several cloud droplet size distributions (Bréon and Goloub 1998), described by 16 droplet effective radii varying between 5 and  $20\ \mu\text{m}$  and an effective variance of 0.1. We select the cloud

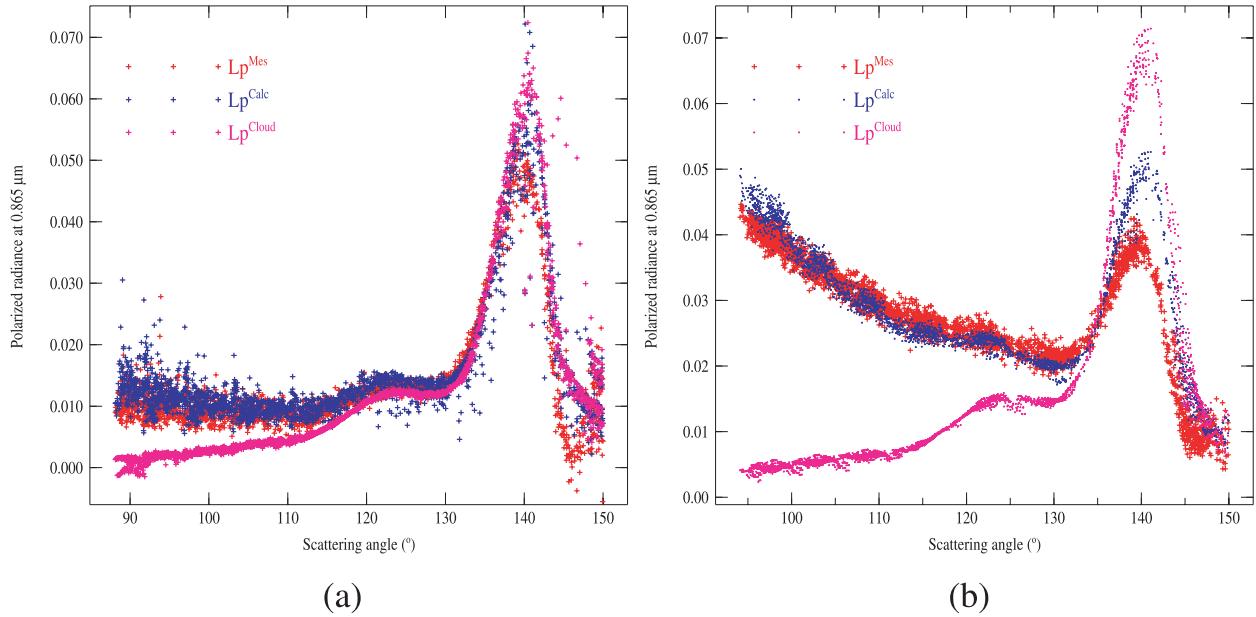


FIG. 5. (a) Polarized radiances measured by PARASOL at  $0.865 \mu\text{m}$  (red) for box 2, saturated polarized radiances for a liquid cloud calculated using the microphysical properties retrieved by MODIS (magenta), and polarized radiances fitted with our algorithm (blue). (b) As in (a), but for box 1.

droplet effective radius based on the collocated simultaneous MODIS effective radius retrieval (Platnick et al. 2003). Polarized radiances measurements at  $0.67$  and  $0.865 \mu\text{m}$  are primarily sensitive to the properties of the fine-mode particles (Waquet et al. 2007). We therefore consider 15 aerosol models in the algorithm, which consists of a single lognormal size distribution of small spherical particles with an effective radius varying between  $0.089$  and  $0.54 \mu\text{m}$  and an effective variance of  $0.173$ . We assume that the refractive index is  $1.47 - 0.01i$ , which is the mean value for fine-mode particles (Dubovik et al. 2002). The cloud-top altitude in Eq. (3) is estimated using the  $\text{O}_2$  method, which was shown to be accurate along the CALIOP satellite track (Fig. 2), and we assume that the  $\text{O}_2$  method is accurate over the entire selected cloudy scene. This assumption is supported by the fact that the cloud properties retrieved by MODIS along the CALIOP orbit track are consistent with those retrieved over the full area (i.e., optically thick low-level liquid clouds), which means that the  $\text{O}_2$  technique should provide the cloud-top height with a comparable accuracy to that shown in Fig. 2. The polarized radiances are calculated with Eq. (1) for each aerosol model and for aerosol optical thicknesses increasing by steps of  $0.001$  between  $0.0$  and  $1.5$  at  $865 \text{ nm}$ . The aerosol model and aerosol optical thickness that minimize a least squares error term calculated between the simulated and measured polarized radiances at  $0.670$  and  $0.865 \mu\text{m}$  (Deuzé et al. 2001) define our retrieved quantities.

Figures 5a and 5b show an example of fitting obtained from our method applied to the  $0.865\text{-}\mu\text{m}$  POLDER polarized radiances of boxes 2 and 1 (see Fig. 1), respectively. Red symbols represent the measured polarized radiances, blue symbols represent the simulated polarized radiances that fit the measured data, and the polarized radiances of the cloud alone calculated using the MODIS cloud effective radius values are in magenta. These results show that our model reproduces the measured polarized radiances at  $0.865 \mu\text{m}$ , except in the rainbow region and for scattering angles larger than  $145^\circ$ . The departures observed between the measured and the fitted polarized radiances are larger at  $0.670 \mu\text{m}$  but do not exceed those predicted by the simulations (see Fig. 4). To provide the best possible AOT estimates, we restrict our algorithm to the  $90^\circ$ – $110^\circ$  scattering angle range because over this range (i) the aerosol contribution is maximal, (ii) the method is only weakly sensitive to the cloud microphysical properties and the effects of potential biases in the retrieved cloud droplet effective radii are minimized, and (iii) the modeling errors introduced by Eq. (1) are minimized. We also used a cloud screening criteria to ensure that our analysis was only applied to cloudy pixels associated with an overcast cloud cover and a high cloud optical thickness (to ensure that the polarization cloud signal is saturated). The cloud screen took advantage of the high spatial resolution retrieval capabilities of MODIS ( $1 \times 1 \text{ km}^2$  at nadir) to estimate within each PARASOL pixel ( $6 \times 6 \text{ km}^2$ ) a mean value and a

standard deviation for both the cloud optical thickness and the cloud droplet effective radius. In the analysis presented here, we only keep the PARASOL pixels associated with a mean cloud optical thickness larger than 5, a cloud optical thickness standard deviation smaller than 4, and a cloud droplet effective radius standard deviation smaller than 2.

#### 4. Results

Figure 6a shows the fine-mode AOTs retrieved by PARASOL at  $0.865\text{ }\mu\text{m}$  over the Atlantic Ocean and southern Africa for cloud-free pixels. Figure 6b shows the AOTs retrieved over cloud and over ocean with a higher-resolution “zoom” view of the selected cloudy area. The AOTs retrieved by PARASOL over land and ocean are operationally provided at a resolution of  $18 \times 18\text{ km}^2$ . We therefore average our retrievals to match that resolution. We calculate a mean AOT when a minimum of five subpixels are available and we only keep the AOT value when the associated standard deviation is smaller than 0.05. These two criteria only weakly reduce the number of observations but they do allow us to eliminate some obviously dubious retrievals at cloud edges. The comparison between Figs. 6a and 6b allows us to distinguish the retrievals made over the cloudy and cloud-free areas. We observe good coherence between the retrievals performed over ocean, land, and clouds. The strongest AOTs are retrieved in the eastern part of the cloudy area, which is the closest one to the source region. The ocean–cloud AOT transitions observed at the northern and southern edges of the cloudy area are qualitatively good. The spatial heterogeneity of the retrievals over clouds is satisfying, especially over the thickest and the most homogeneous cloudy areas (e.g., for  $-25^\circ < \text{latitude} < -20^\circ$  and  $-10^\circ < \text{longitude} < -4^\circ$ ). The biomass burning aerosol layer observed in the eastern part of cloudy area is associated with a mean AOT of 0.225 at  $0.865\text{ }\mu\text{m}$  and an aerosol model effective radius equal to  $0.15\text{ }\mu\text{m}$ . The order of magnitude of the smoke plume AOT is coherent with other passive retrievals made over ocean. It is also very consistent with retrievals on the previous day (17 August 2006), when PARASOL observed fine-mode AOTs ranging between 0.18 and 0.24 at  $0.865\text{ }\mu\text{m}$  between the selected cloudy area and the African coasts ( $-10^\circ < \text{latitude} < -5^\circ$  and  $5^\circ < \text{longitude} < 10^\circ$ ). We also compare our retrievals with the MODIS ones acquired over ocean on 18 August 2006. The ocean–cloud AOT transitions observed in the region of the smoke plume are small, on the order of about 0.04, with the MODIS retrievals being systematically slightly larger than our retrievals. This comparison is presented only as an indication of qualitative

agreement since the aerosol properties that were retrieved by MODIS are on the edge of the cloudy area and may therefore be cloud contaminated (Kaufman et al. 2005). These discrepancies may also result from differences in the aerosol models used in the respective algorithm. We also considered the ultraviolet Aerosol Index (AI) provided by the Ozone Monitoring Instrument (OMI) for the comparison. The AI is sensitive to ultraviolet-absorbing particles such as smoke particles and allows their detection in cloud-free and cloud-contaminated scenes over both ocean and land. This quantity increases with the aerosol optical thickness in the UV but also depends on the absorption and altitude of the aerosols (Herman et al. 1997). OMI uses two spectral bands centered on  $0.331$  and  $0.360\text{ }\mu\text{m}$  to derive the AI at a resolution (at nadir) of  $13\text{ km} \times 24\text{ km}$  (Ahmad et al. 2006) and provides measurements only 6 min after POLDER. The spatial distribution of the AI agrees qualitatively with our AOT estimates made over clouds (not shown). The largest AI values are notably observed where our algorithm retrieves the largest AOT values (e.g.,  $2.0 < \text{AI} < 3.5$  for  $-19^\circ < \text{latitudes} < -11^\circ$  and  $-2^\circ < \text{longitudes} < 4^\circ$ ). OMI also systematically shows low AI values ( $<1.0$ ) when our algorithm retrieves small AOTs over the clouds ( $<0.06$  at  $0.865\text{ }\mu\text{m}$ ).

We finally apply the method to another case of biomass burning particles overlying clouds, detected during the same event but observed closer to the source regions. The northwestern part of southern Africa was partially covered by low thick liquid clouds at the time of the A-train overpass on 18 August 2006. The comparison between the cloud-top heights retrieved with the different passive techniques showed that a significant amount of smoke was transported over this area. Figure 7a shows the fine-mode AOT at  $0.865\text{ }\mu\text{m}$  retrieved by POLDER on 18 August 2006 over southern Africa for the cloud-free pixels. Figure 7b shows the same quantity retrieved for both cloud-free and cloudy pixels. The spatial distribution of the AOT retrieved above the clouds again agrees qualitatively well with the spatial distribution of the AOT retrieved over cloud-free regions. We can notably observe a progressive decrease in the AOT retrieved above the clouds in the northwestern part of the image as we move away from the fire regions. The maximal AOT values are retrieved in the vicinity of the source regions and are larger than in the previous example ( $>0.3$  at  $0.865\text{ }\mu\text{m}$ ), as expected. The retrieved aerosol model is the same as the one previously retrieved for most of the observations (80% for  $\text{AOT} > 0.1$  at  $0.865\text{ }\mu\text{m}$ ). This additional example confirms that our method is quite insensitive to the variability in cloud properties and also that it is stable with respect to particle size retrieval, at least for this specific biomass burning event.

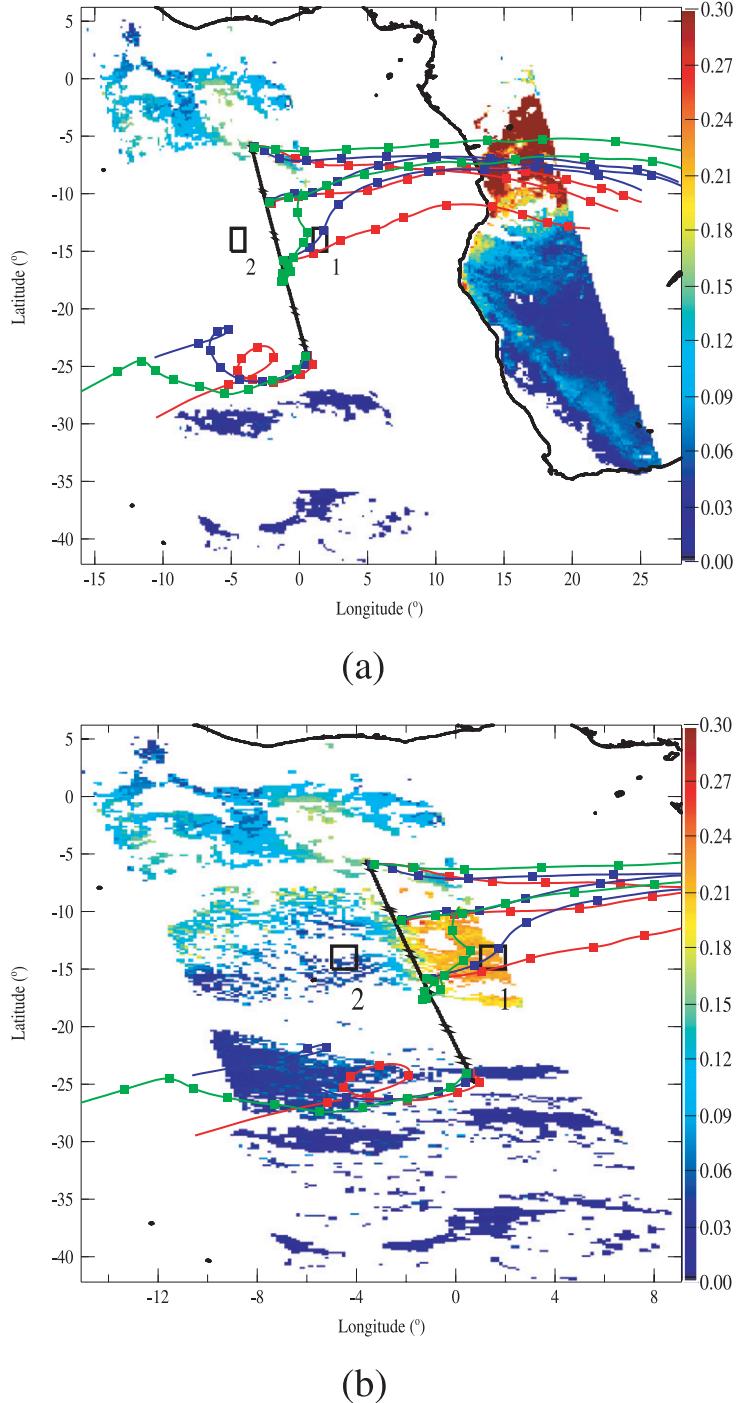


FIG. 6. (a) Fine-mode aerosol optical thickness retrieved at  $0.865 \mu\text{m}$  by PARASOL over ocean and land cloud-free pixels. The back trajectories (solid lines) of the air masses calculated for altitudes equal to 2, 3, and 4 km are in red, green, and blue, respectively. The squares denote calculations separated from 12 h. The straight black solid line corresponds to the CALIOP track segment shown in Fig. 2. The ending points of the back trajectories are located on the CALIOP track segment (see Fig. 2 for longitudes equal to  $-6^\circ$ ,  $-11^\circ$ ,  $-15^\circ$ , and  $-24^\circ$ ). (b) In the zoomed area, AOT values for cloudy scenes are reported in addition to the AOT values for clear pixels. Land AOT values are relative to the PARASOL overpass of 1200 UTC 14 Aug, whereas AOT values over ocean refer to 1400 UTC 18 Aug.

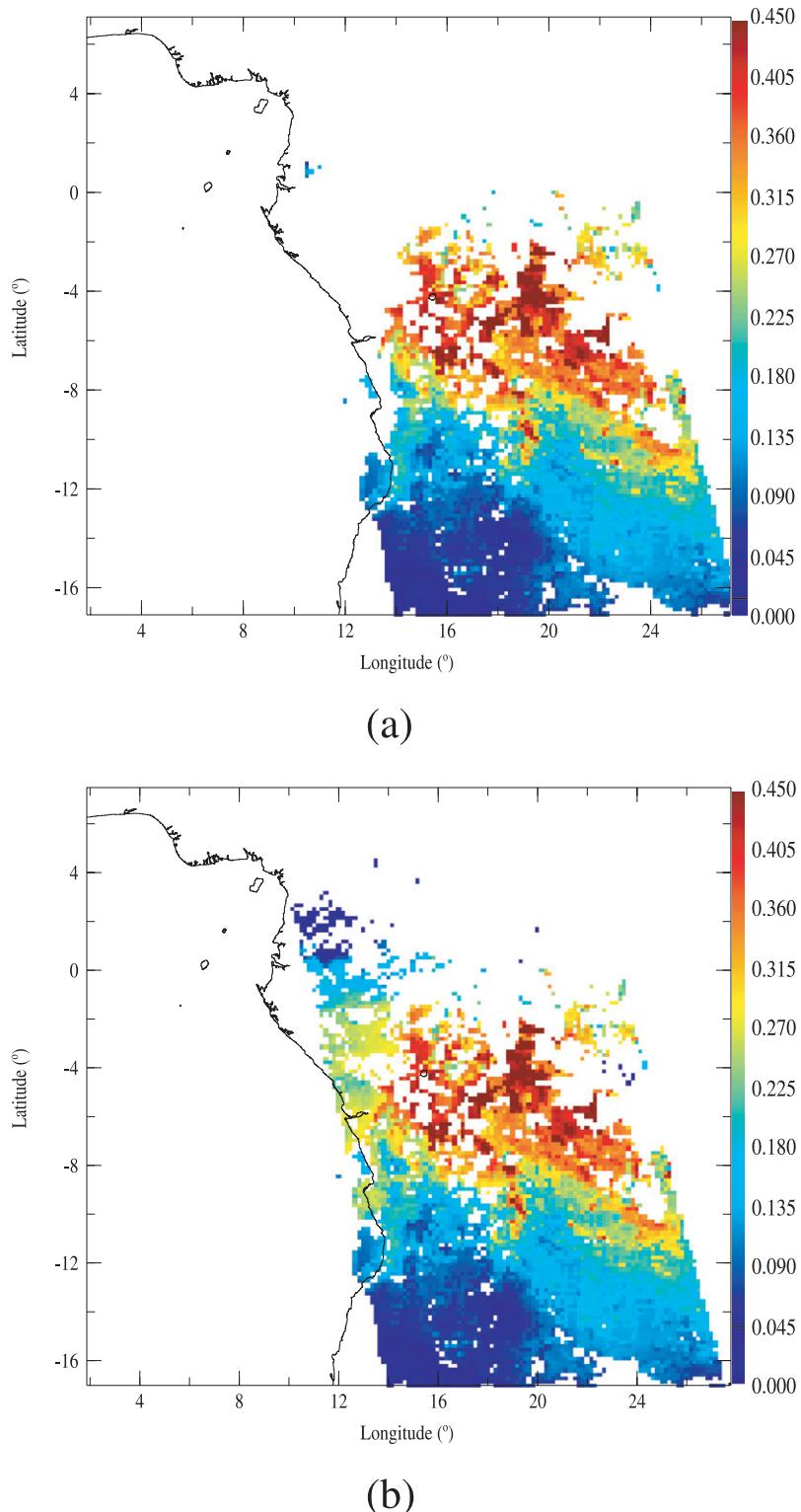


FIG. 7. (a) Fine-mode aerosol optical thickness retrieved at  $0.865 \mu\text{m}$  by PARASOL over ocean and land cloud-free pixels. (b) As in (a), but with AOT values for cloudy scenes. The AOT values are relative to the PARASOL overpass of 1400 UTC 18 Aug.

## 5. Conclusions

We described A-Train observations that allowed the detection of an African biomass-burning aerosol layer transported above low-level clouds extending over the Atlantic Ocean. The comparison between the cloud-top heights retrieved with the different passive techniques developed for the A-Train sensors can be used to detect the presence of aerosols above clouds. This is an important result because it means that A-Train observations can be used to identify polluted cloudy areas where the current passive techniques developed for cloud study either should not be used or should at least be identified as being potentially impacted by aerosol contamination. The analysis of the PARASOL observations and the use of simulations showed that aerosols significantly affect the polarized light reflected by the clouds in the rainbow region and over the 80°–120° scattering angle range. These polarized features together with the fact that the O<sub>2</sub> technique allows the cloud-top height to be estimated make it possible to retrieve the aerosols properties above low-level clouds using a simple approach. A single scattering model of the free atmosphere allowed us to reproduce the polarized observations reasonably well and to retrieve an estimate of the aerosol layer AOT of about 0.225 at 0.865 μm. The AOTs retrieved over clouds agree quantitatively with the closest ones retrieved over clear-sky ocean ( $\pm 0.04$  as a maximum departure), demonstrating the value of our method. This innovative technique will allow aerosol information to be derived operationally over stratocumulus clouds in the near future from POLDER. This is expected to provide a better understanding of aerosol properties in regions where significant cloud cover usually prevents the retrieval of aerosol optical thickness. Also, this will help us understand the radiative interactions between aerosols and cloud layers in regions where clouds have a strong radiative forcing. Finally, this new technique opens interesting prospects for the use of next-generation polarimeters. For instance, the present technique could benefit from the inclusion of the highly accurate, multi-angle, multispectral (0.41–2.25 μm) polarized measurements provided by the future Aerosol Polarimeter Sensor (APS), which will join the A-train in 2010. The adding of polarization measurements at shorter visible wavelengths would provide better sensitivity to aerosol microphysics (Chowdhary et al. 2002; Waquet et al. 2009), whereas the high-angular measurements resolution of APS could be used to accurately estimate the clouds droplet size distribution using polarization observations at large scattering angles (Bréon and Goloub 1998). The next step is to improve the method used for the multiple scattering computations and to

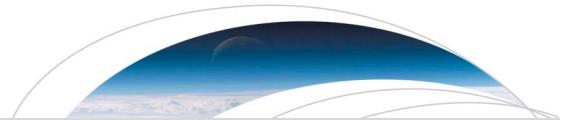
evaluate the possibility of including the retrieval of cloud properties in the inversion. This, of course, is constrained mostly by the computational cost of full radiative transfer simulations and the availability of practical inversion techniques. The future applications of this work are the estimation of the occurrence of aerosol transport over clouds, their impact on cloud property retrievals, and their radiative impacts on a global scale using the 3 yr of observations made by the A-Train.

**Acknowledgments.** The authors are very grateful to CNES and NASA for providing the POLDER, MODIS, and CALIOP data used in this study. We thank the ICARE Data and Services Center for providing access to the data and for general assistance and development support. Thanks are also due to Francois Thieuleux and Fabrice Ducos for support with data processing and analysis. This research has been supported by CNES, CNRS, the University of Lille, and Region Nord-Pas-de-Calais.

## REFERENCES

- Ackermann, J., 1998: The extinction-to-backscatter ratio of tropospheric aerosol: A numerical study. *J. Atmos. Oceanic Technol.*, **15**, 1043–1050.
- Ahmad, S. P., O. Torres, P. K. Bhartia, G. Leptoukh, and S. Kempler, 2006: Aerosol index from TOMS and OMI measurements. Preprints, *14th Joint Conf. on the Applications of Air Pollution Meteorology*, Atlanta, GA, Amer. Meteor. Soc., P1.6. [Available online at <http://ams.confex.com/ams/pdfpapers/104496.pdf>.]
- Bréon, F.-M., and P. Goloub, 1998: Cloud droplet effective radius from spaceborne polarization measurements. *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 1879–1882.
- , D. Tanré, P. Leconte, and M. Herman, 1995: Polarized reflectance of bare soils and vegetation: Measurements and models. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **33**, 487–499.
- , —, and S. Generoso, 2002: Aerosol effect on cloud droplet size monitored from satellite. *Science*, **295**, 834–838.
- Cattani, E., M. J. Costa, F. Torricella, V. Levizzani, and A. M. Silva, 2006: Influence of aerosol particles from biomass burning on cloud microphysical properties and radiative forcing. *Atmos. Res.*, **82**, 310–327, doi:10.1016/j.atmosres.2005.10.010.
- Cattrall, C., J. Reagan, K. Thome, and O. Dubovik, 2005: Variability of aerosol and spectral lidar and backscatter and extinction ratios of key aerosol types derived from selected Aerosol Robotic Network locations. *J. Geophys. Res.*, **110**, D10S11, doi:10.1029/2004JD005124.
- Chowdhary, J., B. Cairns, and L. Travis, 2002: Case studies of aerosol retrievals from multi-angle, multispectral photopolarimetric remote sensing data. *J. Atmos. Sci.*, **59**, 383–397.
- De Graaf, M., P. Stammes, and E. A. A. Aben, 2007: Analysis of reflectance spectra of UV-absorbing aerosol scenes measured by SCIAMACHY. *J. Geophys. Res.*, **112**, D02206, doi:10.1029/2006JD007249.
- De Haan, J. F., P. B. Bosma, and J. W. Hovenier, 1987: The adding method for multiple scattering calculations of polarized light. *Astron. Astrophys.*, **183**, 371–391.

- Deirmendjian, D., 1969: *Electromagnetic Scattering on Spherical Polydispersions*. Elsevier, 318 pp.
- Deuzé, J.-L., M. Herman, and R. Santer, 1989: Fourier series expansion of the transfer equation in the atmosphere–ocean system. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **41**, 483–494.
- , and Coauthors, 2001: Remote sensing of aerosols over land surfaces from POLDER-ADEOS-1 polarized measurements. *J. Geophys. Res.*, **106**, 4913–4926.
- Dubovik, O., B. Holben, T. F. Eck, A. Smirnov, Y. J. Kaufman, M. D. King, D. Tanré, and I. Slutsker, 2002: Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations. *J. Atmos. Sci.*, **59**, 590–608.
- Forster, P., and Coauthors, 2007: Changes in atmospheric constituents and in radiative forcing. *Climate Change 2007: The Physical Science Basis*, S. Solomon et al., Eds., Cambridge University Press, 129–234.
- Goloub, P., J. L. Deuzé, M. Herman, and Y. Fouquart, 1994: Analysis of the POLDER polarization measurements performed over cloud covers. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **32**, 78–88.
- , M. Herman, H. Chepfer, J. Riedi, G. Brogniez, P. Couvert, and G. Séze, 2000: Cloud thermodynamical phase classification from the POLDER spaceborne instrument. *J. Geophys. Res.*, **105**, 14 747–14 760.
- Hansen, J. E., and L. D. Travis, 1974: Light scattering in planetary atmospheres. *Space Sci. Rev.*, **16**, 527–610.
- Herman, J. R., P. Bhartia, O. Torres, C. Hsu, C. Seftor, and E. Celarier, 1997: Global distribution of UV-absorbing aerosol from Nimbus-7/TOMS data. *J. Geophys. Res.*, **102**, 16 911–16 922.
- Herman, M., J.-L. Deuzé, A. Marchand, B. Roger, and P. Lallart, 2005: Aerosol remote sensing from POLDER/ADEOS over the ocean: Improved retrieval using a nonspherical particle model. *J. Geophys. Res.*, **110**, D10S02, doi:10.1029/2004JD004798.
- Hsu, N. C., S. C. Tsay, M. D. King, and J. R. Herman, 2004: Aerosol retrievals over bright-reflecting source regions. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **42**, 557–569.
- Kaufman, Y. J., D. Tanré, L. Remer, E. Vermote, A. Chu, and B. Holben, 1997: Operational remote sensing of tropospheric aerosol over land from EOS moderate resolution imaging spectroradiometer. *J. Geophys. Res.*, **102**, 17 051–17 067.
- , and Coauthors, 2005: A critical examination of the residual cloud contamination and diurnal sampling effects on MODIS estimates of aerosol over ocean. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **43**, 2886–2897.
- Kim, S.-W., S. Berthier, J.-C. Raut, P. Chazette, F. Dulac, and S.-C. Yoon, 2008: Validation of aerosol and cloud layer structures from the space-borne lidar CALIOP using a ground-based lidar in Seoul, Korea. *Atmos. Chem. Phys.*, **8**, 3705–3720.
- Lafrance, B., 1997: Modélisation simplifiée de la lumière polarisée émergeant de l'atmosphère: Correction de l'impact des aérosols stratosphériques sur les mesures de POLDER. Ph.D. thesis, Université des Sciences et Techniques de Lille, 114 pp.
- Menzel, W. P., R. A. Frey, B. A. Baum, and H. Zhang, 2006: Cloud top properties and cloud phase algorithm theoretical basis document, version 7, 55 pp. [Available online at [http://modis-atmos.gsfc.nasa.gov/\\_docs/MOD06CT:MYD06CT\\_ATBD\\_C005.pdf](http://modis-atmos.gsfc.nasa.gov/_docs/MOD06CT:MYD06CT_ATBD_C005.pdf).]
- Parol, F., J. C. Buriez, C. Vanbauce, P. Couvert, G. Séze, P. Goloub, and S. Cheinet, 1999: First results of the POLDER “Earth Radiation Budget and Clouds” operational algorithm. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **37**, 1597–1612.
- , and Coauthors, 2004: Capabilities of Multi-Angle Polarization Cloud measurements from satellite: POLDER results. *Adv. Space Res.*, **33**, 1080–1088.
- Platnick, S., M. D. King, S. A. Ackerman, W. P. Menzel, B. A. Baum, J. C. Riédi, and R. A. Frey, 2003: The MODIS cloud products: Algorithms and examples from Terra. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **41**, 459–473.
- Stephens, G. L., and Coauthors, 2002: The CloudSat mission and the A-TRAIN: A new dimension of space-based observations of clouds and precipitation. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **83**, 1771–1790.
- Tanré, D., Y. J. Kaufman, and S. Mattoo, 1997: Remote sensing of aerosol properties over oceans using the MODIS/EOS spectral radiances. *J. Geophys. Res.*, **102**, 16 971–16 988.
- , F.-M. Bréon, J.-L. Deuzé, M. Herman, P. Goloub, F. Nadal, and A. Marchand, 2001: Global observation of anthropogenic aerosols from satellite. *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 4555–4558.
- Vanbauce, C., B. Cadet, and R. T. Marchand, 2003: Comparison of POLDER apparent and corrected oxygen pressure to ARM/MMCR cloud boundary pressures. *Geophys. Res. Lett.*, **30**, 1212, doi:10.1029/2002GL016449.
- Vaughan, M., S. Young, D. Winker, K. Powell, A. Omar, Z. Liu, Y. Hu, and C. Hostetler, 2004: Fully automated analysis of space-based lidar data: An overview of the CALIPSO retrieval algorithms and data products. *Laser Radar Techniques for Atmospheric Sensing*, U. N. Singh, Ed., International Society for Optical Engineering (SPIE Proceedings, Vol. 5575), 16–30, doi:10.1117/12.572024.
- Waquet, F., P. Goloub, J.-L. Deuzé, J. F. Léon, F. Auriol, C. Verwaerde, J.-Y. Balois, and P. François, 2007: Aerosol retrieval over land using a multiband polarimeter and comparison with path radiance method. *J. Geophys. Res.*, **112**, D11214, doi:10.1029/2006JD008029.
- , B. Cairns, K. Knobelspiesse, J. Chowdhary, L. D. Travis, B. Schmid, and M. I. Mishchenko, 2009: Polarimetric remote sensing of aerosols over land. *J. Geophys. Res.*, **114**, D01206, doi:10.1029/2008JD010619.
- Winker, D. M., W. H. Hunt, and C. A. Hostetler, 2004: Status and performance of the CALIOP lidar. *Laser Radar Techniques for Atmospheric Sensing*, U. N. Singh, Ed., International Society for Optical Engineering (SPIE Proceedings, Vol. 5575), 8–15, doi:10.1117/12.571955.



## Geophysical Research Letters

### RESEARCH LETTER

10.1002/2016GL068222

#### Key Points:

- Above-cloud AOT and SSA retrieved by POLDER are compared with AeroCom models over the South East Atlantic Ocean
- Most models do not reproduce the observed large aerosol load above clouds
- The black carbon refractive index is a key parameter to reproduce POLDER's above-cloud SSA

#### Correspondence to:

F. Peers,  
f.peers@exeter.ac.uk

#### Citation:

Peers, F., et al. (2016), Comparison of aerosol optical properties above clouds between POLDER and AeroCom models over the South East Atlantic Ocean during the fire season, *Geophys. Res. Lett.*, 43, 3991–4000, doi:10.1002/2016GL068222.

Received 9 SEP 2015

Accepted 5 APR 2016

Accepted article online 7 APR 2016

Published online 21 APR 2016

## Comparison of aerosol optical properties above clouds between POLDER and AeroCom models over the South East Atlantic Ocean during the fire season

**F. Peers<sup>1,2</sup>, N. Bellouin<sup>3</sup>, F. Waquet<sup>1</sup>, F. Ducos<sup>1</sup>, P. Goloub<sup>1</sup>, J. Mollard<sup>3</sup>, G. Myhre<sup>4</sup>, R. B. Skeie<sup>4</sup>, T. Takemura<sup>5</sup>, D. Tanré<sup>1</sup>, F. Thieuleux<sup>1</sup>, and K. Zhang<sup>6,7</sup>**

<sup>1</sup>Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Université Lille 1, Villeneuve d'Ascq, France, <sup>2</sup>Now at College of Engineering, Mathematics, and Physical Sciences, University of Exeter, Exeter, UK, <sup>3</sup>Department of Meteorology, University of Reading, Reading, UK, <sup>4</sup>Center for International Climate and Environmental Research – Oslo, Oslo, Norway, <sup>5</sup>Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University, Fukuoka, Japan, <sup>6</sup>Max Planck Institute for Meteorology, Hamburg, Germany, <sup>7</sup>Pacific Northwest National Laboratory, Richland, Washington, USA

**Abstract** Aerosol properties above clouds have been retrieved over the South East Atlantic Ocean during the fire season 2006 using satellite observations from POLDER (Polarization and Directionality of Earth Reflectances). From June to October, POLDER has observed a mean Above-Cloud Aerosol Optical Thickness (ACAOT) of 0.28 and a mean Above-Clouds Single Scattering Albedo (ACSSA) of 0.87 at 550 nm. These results have been used to evaluate the simulation of aerosols above clouds in five Aerosol Comparisons between Observations and Models (Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport (GOCART), Hadley Centre Global Environmental Model 3 (HadGEM3), European Centre Hamburg Model 5-Hamburg Aerosol Module 2 (ECHAM5-HAM2), Oslo-Chemical Transport Model 2 (OsloCTM2), and Spectral Radiation-Transport Model for Aerosol Species (SPRINTARS)). Most models do not reproduce the observed large aerosol load episodes. The comparison highlights the importance of the injection height and the vertical transport parameterizations to simulate the large ACAOT observed by POLDER. Furthermore, POLDER ACSSA is best reproduced by models with a high imaginary part of black carbon refractive index, in accordance with recent recommendations.

### 1. Introduction

The large uncertainties related to aerosol radiative impacts are a major concern in climate research [Boucher *et al.*, 2013; Myhre *et al.*, 2013a]. When aerosols are horizontally collocated with clouds, the estimation of their radiative forcing is challenging because of the variety and the complexity of the interaction processes. Aerosols have a direct impact on the Earth radiative budget by scattering and absorbing radiations. These interactions influence the vertical profile of temperature and humidity, which affects the formation and the development of clouds (semidirect effect). Aerosols have also an impact on the cloud albedo, lifetime, and precipitation by acting as cloud condensation nuclei (indirect effects). Therefore, overlapping of aerosol and cloud layers is a key situation that helps understand the aerosol impacts on the Earth system.

The South East Atlantic Ocean (SEAO) is a particularly good region for analyzing the full range of aerosol perturbations [Keil and Haywood, 2003]. From June to September, biomass burning aerosols are injected into the atmosphere in Southern Africa and are often transported westward to the coast. Smoke plumes are frequently observed above the semipermanent deck of stratocumulus clouds over the ocean [Devasthale and Thomas, 2011]. Composed of a complex combination of black and organic carbon [Saleh *et al.*, 2014], smoke aerosol plumes absorb UV and visible light. Above highly reflective clouds, their Direct Radiative Effect (DRE) is usually positive because aerosol absorption reduces local planetary albedo. Recent studies based on remote sensing observations have shown that the DRE of Above-Cloud Aerosols (ACA) is typically strong over the SEAO and can reach instantaneous values larger than  $+130 \text{ W m}^{-2}$  [DeGraaf *et al.*, 2012; Peers *et al.*, 2015]. However, global aerosol models do not reproduce such high DRE [DeGraaf *et al.*, 2014]. Moreover, a large spread in DRE estimates is observed within AeroCom (Aerosol Comparisons between Observations and Models) models in this region [Myhre *et al.*, 2013b; Stier *et al.*, 2013]. This highlights the need to better constrain aerosol and cloud properties, and especially those controlling the DRE of ACA: the amount of aerosols above clouds, their absorption, and the albedo of the underlying clouds. In this study, the first two parameters will be addressed.

In the last few years, methods have been developed to derive aerosol properties above clouds from passive satellite measurements. On the one hand, Ozone Monitoring Instrument (OMI) and Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) observations have been used to retrieve simultaneously the Above-Cloud Aerosol Optical Thickness (ACAAOT) and cloud properties, such as the Aerosol-Corrected Cloud Optical Thickness (ACCOT) and the cloud droplet effective radius [Torres *et al.*, 2012; Jethva *et al.*, 2013; Meyer *et al.*, 2015]. However, those algorithms rely on a prescription of an aerosol model, notably their Above-Cloud Single Scattering Albedo (ACSSA), because total radiances are mostly sensitive to the absorption of the overlaying aerosols. On the other hand, polarized radiances provide an additional constraint because they carry the scattering of the aerosol layer above liquid clouds [Waquet *et al.*, 2009]. POLDER (Polarization and Directionality of Earth Reflectances) aboard the PARASOL (Polarization and Anisotropy of Reflectances for Atmospheric Science coupled with Observations from a Lidar) satellite [Tanré *et al.*, 2011] has the unique capability of measuring not only total radiances but also polarized radiances for several wavelengths and viewing angles. In order to fully exploit the potential of this instrument, the method developed by Waquet *et al.* [2013a, 2013b] to retrieve the ACAAO from polarized measurement has been recently improved with total radiances [Peers *et al.*, 2015] and now also retrieves the ACSSA and the ACCOT. Those new remote sensing retrievals offer new possibilities to assess more aspects of the numerical simulations of aerosols. DeGraaf *et al.* [2014] have carried out a comparison of the aerosol DRE obtained with Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography with the HadGEM2 model. However, comparing aerosol properties (i.e., ACAAO and ACSSA) is necessary to understand the processes responsible for diversity in modeled DREs.

This study aims at illustrating the potential of the new POLDER products to constrain the aerosol properties simulated by five global models that participated in AeroCom phase II [Myhre *et al.*, 2013b]. The POLDER algorithm has been applied to the SEAO region during the fire season. Descriptions of the POLDER retrieval, the analyzed models, and the comparison methodology are given in section 2. Results are presented in section 3, and explanations of the observed differences between models and POLDER are discussed in section 4. Finally, section 5 summarizes the main findings.

## 2. Data and Method

### 2.1. POLDER Aerosol-Above-Cloud Properties

The multidirectional polarized and total radiances measured by POLDER are used in a complementary way. The first step of the aerosol retrieval consists in the estimation of the scattering AOT and aerosol size distribution. The polarized signal of liquid clouds is characterized by a large peak at a scattering angle  $\Theta \approx 140^\circ$ , which is called the cloud bow, and a small amount of polarization at side scattering angles (i.e.,  $\Theta < 130^\circ$ ). Because the polarized signature only comes from the upper cloud layer, it no longer depends on the COT when the COT is larger than 3 [Goloub *et al.*, 1994]. When aerosols are located above clouds, the extinction leads to a reduction of the cloud bow, while scattering processes from the fine mode generates an additional polarization at side scattering angles. Consequently, the scattering AOT and the fine-mode aerosol effective radius are retrieved based on the signal acquired for  $\Theta < 130^\circ$  at 670 and 865 nm. The second step of the algorithm is dedicated to the simultaneous retrieval of the Above-Cloud Absorption AOT (ACAAOT) and the COT with total radiances. While the signal produced at the top of the clouds is almost spectrally neutral from UV to shortwave infrared wavelengths [DeGraaf *et al.*, 2012], the spectral signature of the aerosol absorption leads to a stronger impact on radiances at shorter wavelengths. This is called the color-ratio effect [Jethva *et al.*, 2013]. Once scattering AOT and aerosol size are known, radiances at 490 nm and 865 nm can be interpreted as a pair of COT and ACAAO. Both parts of the retrieval are based on a look-up table approach. The retrieval is attempted for each  $6 \times 6 \text{ km}^2$  POLDER pixel with  $\text{COT} \geq 3$ . To enhance the quality of the product, several filters are applied. Notably, inhomogeneous clouds are rejected, which represents less than 17% of the observations over the SEAO in August and September 2006. More details about the algorithm and the applied filters are provided in the papers of Waquet *et al.* [2013a, 2013b] and Peers *et al.* [2015]. The POLDER Level 1 products used in this analysis correspond to the PARASOL Collection 2 v03.02.

The accuracy of the retrieved aerosol properties mainly depends on the assumption made about the real part of the refractive index (1.47) and the approximation that polarized radiances only account for the scattering AOT. The impacts of both assumptions on the retrieval have been assessed in Figure 5 of Peers *et al.* [2015]. In this analysis, the uncertainty on the ACAAO and the ACSSA has been evaluated for each inversion by

**Table 1.** Model General Description<sup>a</sup>

| Model          | Type | Resolution | Levels | Meteorology  | Aerosol Injection Over the Southern Africa  | BC and OC Lifetime (days) | BC Refractive Index          | Responsible                                | References  |
|----------------|------|------------|--------|--|---|---------------------------|------------------------------|--|---|
| GOCART-v4      | CTM  | 2.5°×2.0°  | 30     | GEOOS-4 DAS (Goddard Earth Observing System version 4 Data Assimilation System), reanalysis for year 2006  | Biomass emission in the boundary layer  | BC: 6.1 OC: 5.0           | 1.75–0.44i                   | Thomas Diehl Mian Chin                     | Chin et al. [2000, 2002, 2009]; Ginoux et al. [2001]            |
| HadGEM3-A      | GCM  | 1.8°×1.2°  | 85     | ERA Interim data for 2008, nudged  | Biomass emission in the boundary layer  | BC: 4.1 OC: 4.0           | 1.85–0.71i                   | Nicolas Bellouin James Mollard             | Bellouin et al. [2011, 2013]                                    |
| ECHAM5-HAM2    | GCM  | 1.8°×1.8°  | 31     | Model nudged with European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) analysis for the year 2006  | Maximum emission height around 2 km over [Dentener et al., 2006]                                | BC: 5.9 POA: 6.4          | 1.85–0.71i                   | Ulrike Lohmann Philip Stier Kai Zhang      | Vignati et al. [2004]; Stier et al. [2005]; Zhang et al. [2012] |
| OsloCTM2-v2    | CTM  | 2.8°×2.8°  | 60     | ECMWF reanalysis from the Integrated Forecast System model for year 2006   | Emission injection height from project RETRO [Schultz et al., 2007], between 0 and 5 km         | BC: 6.3 OM: 5.1           | variable and OC mixture with | Gunnar Myhre Ragnhild Skeie Terje Berntsen | Myhre et al. [2007, 2009]; Skeie et al. [2011]                  |
| SPRINTARS-v384 | GCM  | 1.1°×1.1°  | 56     | National Centers for Environmental Prediction /National Center for Atmospheric Research reanalysis (temperature and horizontal wind), nudged (year 2006) | Emission of carbonaceous aerosol from biomass burning below around 3 km [Takemura et al., 2000] | BCPOM: 5.9                | 1.75–0.44i                   | Toshihiko Takemura                         | Takemura et al. [2005, 2009]                                    |

<sup>a</sup>CTM: Chemistry Transport Model; GCM: general circulation model; BC: black carbon, OC: organic carbon, POA: primary organic aerosol, OM: organic matter, BCPOM: black carbon and particulate organic matter.

reporting these errors. Additionally, the cloud top height (CTH) has been estimated with POLDER based on the apparent O<sub>2</sub> pressure method [Vanbauce et al., 2003] since the presence of an aerosol layer above clouds has little impact on the retrieval [Waquet et al., 2009].

## 2.2. AeroCom Models and Comparison Methodology

The AeroCom project brings together international global aerosol models in order to better understand and reduce model diversity by using common experimental data protocols and emission inventories. Five models have supplied the daily profiles needed for this analysis: Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport (GOCART), Hadley Centre Global Environmental Model 3 (HadGEM3), European Centre Hamburg Model 5-Hamburg Aerosol Module 2 (ECHAM5-HAM2), Oslo-Chemical Transport Model 2 (OsloCTM2), and Spectral Radiation-Transport Model for Aerosol Species (SPRINTARS). The runs correspond to the AeroCom control simulations (A2-CTRL-06) [Schulz et al., 2009]. Model descriptions are given in Table 1, and additional information can be found in Myhre et al. [2013b].

In order to select aerosols above clouds only, we have used daily vertical profiles of the aerosol extinction, the aerosol absorption, and the cloud fraction (CF). In absence of more detailed information about clouds (e.g., the liquid water content), CF profiles have been used to identify the location of the modeled cloud layer. The CTH is defined as the altitude where the CF becomes larger than 15% assuming maximum overlap. Since the POLDER algorithm rejects the events contaminated by cirrus, the presence of clouds is not taken into account in models for altitude larger than 4 km, where clouds are most likely

in ice or mixed phase. The aerosol extinction and absorption are then integrated from the top of the atmosphere to the cloud top height in order to compute ACAOT and ACSSA. Finally, each  $6 \times 6 \text{ km}^2$  POLDER observation is compared with the co-located modeled aerosol properties. For each model, comparison to POLDER is done only where both POLDER and the model have clouds.

The impact of the CF threshold has been examined by considering thresholds of  $15\% \pm 3\%$ . Because the modeled vertical profile of CF shows a well-defined layer at low altitude, the threshold has a small impact, with a maximum mean change of  $\pm 3\%$  only for the ACAOT and less than  $\pm 1\%$  for the ACSSA.

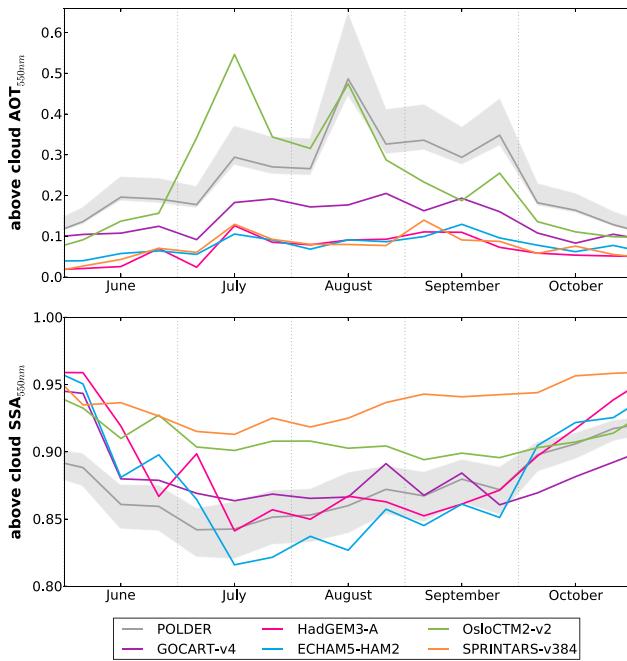
### 3. Results

The comparison between POLDER and AeroCom models is performed in terms of CTH, ACAOT, and ACSSA at 550 nm over the SEAO region ( $5^\circ\text{N}$ – $30^\circ\text{S}$ ,  $20^\circ\text{E}$ – $20^\circ\text{W}$ ) for the fire season 2006. Figure 1 shows the ACAOT and ACSSA time series from June to October. Variation of the POLDER ACAOT is consistent with the DRE seasonality observed by *DeGraaf et al.* [2014]. On average over the 5 months, POLDER retrieves an ACAOT equal to 0.28 with an uncertainty interval ranging from 0.26 to 0.36. The ACAOT derived from models shows a large spread. OsloCTM2 is the model that best reproduces the satellite estimations of the ACAOT regarding both the temporal evolution (e.g., the peaks in July, August, and September) and the average over the period (i.e., 0.26). The ACAOT derived from GOCART is half that of POLDER with a mean value of 0.15. The amount of aerosols above clouds in HadGEM3, ECHAM5-HAM2, and SPRINTARS hardly exceeds 0.1 with averages of 0.08, 0.09, and 0.09, respectively. The analysis of the mean SSA profiles for August–September have revealed a distinct above-cloud layer in all models. This indicates that no significant amount of biomass burning aerosols is located within the cloud. The temporal evolution of the aerosol absorption from POLDER can be divided in two periods. The ACSSA decreases from 0.89 in June to a minimum of 0.84 at the beginning of July. Then, a steady upward trend is observed reaching ACSSA = 0.92 in late October. From June to October, POLDER has retrieved a mean ACSSA of  $0.87 \pm 0.02$ . All five models reproduce the temporal evolution of the ACSSA, which is most likely due to the seasonal variation of biomass burning black carbon emissions. Simulations of ACSSA can be split into two groups. First, OsloCTM2 and SPRINTARS give higher ACSSA estimations with mean values of 0.90 and 0.94. Second, the ACSSA derived from GOCART, HadGEM3, and ECHAM5-HAM2 are closer to POLDER with averages of 0.87, 0.87, and 0.86, respectively. However, no model reproduces the small ACSSA retrieved at the beginning of June. Note that it can be more difficult to retrieve the aerosol size distribution from polarized measurements for small aerosol load, which can impact the ACSSA estimation. In June, the extinction Ångström exponent is around 1.9 in this region, which is consistent with biomass burning particles. The low POLDER ACSSA could also be explained by the increased burning activity in Namibia due to the early-dry season burn policy introduced there in 2006 [*Pricope and Binford, 2012*].

We now focus on August and September, when the aerosol load above clouds is largest. Figure 2 shows the POLDER and the modeled ACAOT and ACSSA. POLDER retrieves the largest ACAOT next to the coast for latitudes between  $0^\circ\text{S}$  and  $10^\circ\text{S}$ . Averaged ACSSA lower than 0.86 are observed between  $10^\circ\text{S}$  and  $20^\circ\text{S}$  close to the aerosol source and the ACSSA increases as the smoke outflow gets further from the coast. All models are able to represent the transport of aerosols to the ocean. This is partly because models nudged their meteorology to reanalyses. The spatial distribution of the ACSSA is better reproduced by HadGEM3 and OsloCTM2 than GOCART, which obtains the lowest ACSSA at latitudes under  $20^\circ\text{S}$ , associated with the lowest ACAOT.

Figure 3 shows the probability density function (PDF) of the CTH, the ACAOT and the ACSSA, respectively. The distribution of the POLDER CTH peaks at 1.1 km (Figure 3a), which is consistent with previous CALIOP observations in this region [*Chand et al., 2009*]. The GOCART, HadGEM3, and OsloCTM2 CTH are close to the POLDER estimations. The ECHAM5-HAM2 and the SPRINTARS PDF peaks at lower altitudes (i.e., around 0.6 km), and the distribution is wider in ECHAM5-HAM2. However, the CTH derived from the models is situated within a reasonably narrow range of values, which validates our detection of cloud layer in the models.

The POLDER ACAOT has a large temporal and spatial variability (Figure 3b), with a standard deviation (SD) of 0.23. It reveals that the presence of aerosols above clouds is due to sporadic particle plumes. Apart from OsloCTM2 that efficiently reproduces the POLDER PDF, the distributions of other models are too narrow and shifted to small ACAOTs. This lack of large aerosol loads above clouds is one reason that prevents these models from giving high instantaneous DRE values [*DeGraaf et al., 2014*].



**Figure 1.** Time series of the ACAOT and ACSSA at 550 nm over the SEAO (5°N–30°S, 20°E–20°W) for the fire season 2006. Each point corresponds to a 10 day average. The gray zone corresponds to the POLDER retrieval uncertainty.

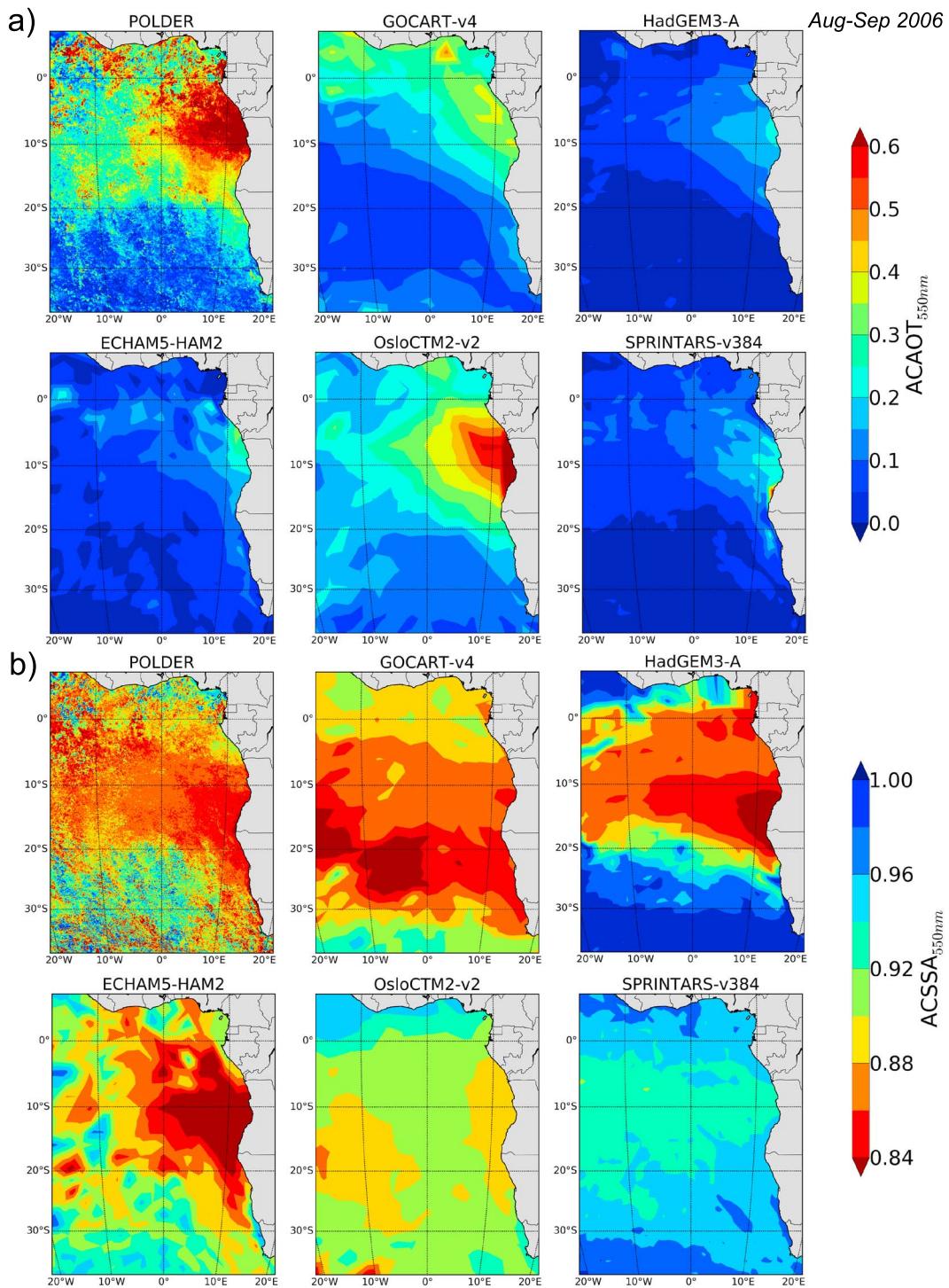
0.016). In order to assess the validity of the POLDER comparison, AERONET level 2.0 SSA retrievals for inland sites of Southern Africa (10°S–35°S, 10°E–40°E) in August and September have been co-located with SSAs from models. The data set stretches from 1995 to 2014, which represents 483 successful retrievals. Figure 3d displays the PDF obtained for clear-sky SSA. The distribution for ECHAM5-HAM2 is not shown because data were not available. The AERONET distribution peaks at a slightly lower SSA (0.85) than POLDER. In the same way, the modeled absorption is stronger in Figure 3d than in Figure 3c. Those differences may be due to aging processes during the aerosol transport from land to ocean [Sayer *et al.*, 2014]. Also, clear-sky SSA characterizes the entire atmospheric column, unlike ACSSA which isolates the aerosol layer transported aloft. Otherwise, POLDER brings a similar constraint to AERONET, but with a much improved spatial coverage and much more observations. In summary, OsloCTM2 and SPRINTARS overestimate the SSA, while GOCART and HadGEM3 are closer to POLDER retrievals.

#### 4. Discussion

The differences between the modeled ACAOT and ACSSA partly explain the large spread of the aerosol radiative impact over the SEAO [Myhre *et al.*, 2013b]. This comparison suggests that AeroCom models underestimate the aerosol DRE above clouds because they underestimate the amount of aerosols and/or overestimate the ACSSA. Diversity in modeled cloud albedo would also contribute, but the model distributions required are not available in AeroCom. The reasons of the diversity in the modeled aerosol optical properties above clouds are investigated further below.

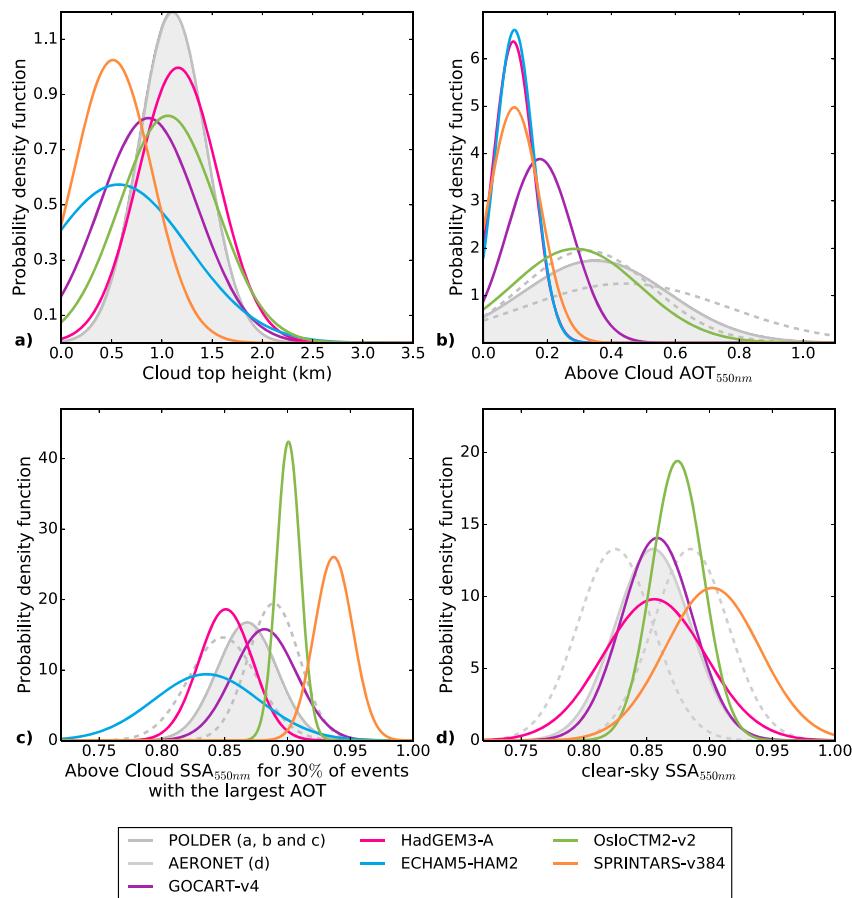
First, the diversity in the modeled ACAOT can result from differences in the aerosol removal processes and transport or in the injection of emissions. Lifetimes of organic carbon and black carbon (BC) aerosols are given in Table 1. There is no correlation between aerosol lifetimes and ACAOT. Therefore, the underestimation of the ACAOT does not seem to come from too strong removal processes. However, global lifetimes are probably not representative of aerosols in the SEAO region. Additionally, we have analyzed the importance of the vertical aerosol profile. The aerosol vertical distribution has been qualitatively assessed near biomass burning sources (20°N–20°S, 20°E–30°E) by calculating the mean extinction height  $Z_a$  [Koffi *et al.*, 2012]. In August to September, OsloCTM2 has a  $Z_a$  of 2.08 km, which is comparable to the 2.03 km observed by CALIOP over

In order to compare the ACSSA of events with the most important potential radiative impact, Figure 3c shows only the ACSSA for 30% of events with the largest ACAOT. The POLDER distribution peaks at  $0.87 \pm 0.02$ , which covers both the GOCART and the HadGEM3 mean values (0.88 and 0.85). The peaks of the ECHAM5-HAM2 and the OsloCTM2 distribution are close with averages of 0.84 and 0.90. The aerosols above clouds derived from SPRINTARS are the most scattering with a mean ACSSA of 0.94. The seasonal variations of the ACSSA are larger than retrieval errors with a SD of  $0.023 \pm 0.004$ . The spread of the GOCART and HadGEM3 distribution is consistent with POLDER (SD of 0.025 and 0.023). The variability of the ACSSA derived from ECHAM5-HAM2 is twice as large as that of POLDER (SD = 0.046). In contrast, the OsloCTM2 and SPRINTARS distributions are sharp (SD of 0.010 and



**Figure 2.** (a) ACAOT and (b) ACSSA at 550 nm over the SEAO from August to September 2006.

approximately the same area ( $20^{\circ}\text{N}$ – $20^{\circ}\text{S}$ ,  $0^{\circ}\text{E}$ – $45^{\circ}\text{E}$ ) in September–November [Koffi et al., 2012]. For the other models, aerosols are located at lower altitudes:  $Z_{\alpha}$  is 1.44, 1.30, 1.33, and 1.22 km for GOCART, HadGEM3, ECHAM5-HAM2, and SPRINTARS, respectively. Consequently, a correct  $Z_{\alpha}$  is important to simulate a realistic distribution of ACAOT. A reason for the larger  $Z_{\alpha}$  of OsloCTM2 could be its higher injection height: it is the only model to emit aerosols above the boundary layer in Southern Africa. However, the model-based analysis of Veira et al. [2015a] has shown that only a small fraction of plumes reaches the free troposphere. Also, most



**Figure 3.** (a–c) Probability density function (PDF) of aerosol and cloud properties in ACA scenes over the SEAO ( $5^{\circ}\text{N}$ – $30^{\circ}\text{S}$ ,  $20^{\circ}\text{E}$ – $20^{\circ}\text{W}$ ) for August to September 2006. Dashed gray lines correspond to the boundaries of the POLDER retrieval uncertainty for the ACAOT and the ACSSA. (d) PDF of clear-sky SSA. AERONET level 2 retrievals are compared with co-located SSA derived from AeroCom models for August to September 1995–2014 over Southern Africa ( $10^{\circ}\text{N}$ – $35^{\circ}\text{S}$ ,  $40^{\circ}\text{E}$ – $10^{\circ}\text{W}$ ). Dashed gray lines correspond to the boundaries of the AERONET retrieval uncertainty for the SSA. (List of AERONET sites: Bethlehem, Durban UKZN, Elandsfontein, Etosha Pan, Gorongosa, Inhaca, Joberg, Kaloma, Maun Tower, Mfuwe, Mongu, Mongu Inn, Mwinilunga, Ndola, Pietersburg, Pretoria CSIR-DPSS, Senanga, Sesheke, Skukuza, SKUKUZA AEROPORT, Solwezi, Wits University, and Zambezi).

of the source are located at altitudes higher than the marine boundary layer. In the absence of vertical transport, this implies that smoke is already injected at altitudes higher than the clouds. Consequently, differences in emission heights do not fully explain differences in modeled aerosol vertical profiles [Kipling *et al.*, 2013; Veira *et al.*, 2015b]. The strength of the vertical transport, which depends on the convection parameterization in models, also controls the aerosol vertical distribution, suggesting that model calibration is necessary.

Second, our study reveals the large diversity in the modeled ACSSA. ECHAM5-HAM2 and HadGEM3 are the models that better reproduce both the spatial distribution and mean of the ACSSA. Both models prescribe a high imaginary part of the BC refractive index (0.71) following the recommendation of Bond and Bergstrom [2006]. In contrast, the BC prescription of GOCART and SPRINTARS is less absorbing with an imaginary part of the refractive index of 0.44, based on the WCP model [1986]. OsloCTM2 has combined properties for BC and organic aerosols (OA) and its SSA for aged biomass burning aerosols is 0.91 at low relative humidity. The mass ratio of BC to OA also affects the SSA. Column-integrated BC:OA ratio for August–September over the SEAO is similar for HadGEM3, OsloCTM2, and SPRINTARS (5.4%, 6.2%, and 6.1%, respectively), confirming that differences in the modeled ACSSA come from the prescription of the BC refractive index. To quantify the impact of the BC:OC ratio, Mie calculations of the SSA have been performed, assuming a single mode lognormal number size distribution with a geometric mean radius of  $0.12\text{ }\mu\text{m}$  and a standard deviation of 1.30, which is consistent with the measurements performed during the SAFARI 2000 campaign for aged

biomass burning aerosols [Haywood *et al.*, 2003]. For a BC:OA ratio of 5.5%, the SSA is 0.91 when the WCP refractive index of BC is used, as in SPRINTARS, but decreases to 0.86 with the more recent BC prescription, as in HadGEM3. ECHAM5-HAM2 and GOCART have a higher BC:OA ratio (11.8% and 7.8%). For a ratio of 7.5%, the SSA obtained with the less absorbing BC prescription is 0.88. It decreases to 0.82 when the more absorbing BC refractive index is considered. Therefore, using a recent BC prescription allows reproducing the low SSA observed by POLDER. In addition, the low ACSSA modeled by GOCART for small ACAOT are attributed to the large contribution of BC to the aerosol load. At latitude lower than 20°S, the BC:OA ratio is around 8.7%. It could be caused by an over-efficient BC vertical dispersion for GOCART and an underestimation of removal processes [Schwarz *et al.*, 2010, 2013]. The ACSSA of ECHAM5-HAM2 is larger than expected from its large BC:OA ratio because of contributions of third-party species like sea salt or sulfate.

## 5. Conclusions

Multidirectional polarized and total radiance measurements from POLDER/PARASOL provide sensitivity to the scattering and the absorption of aerosol layers located above liquid clouds. A method has been developed to retrieve the ACAOT and ACSSA and the aerosol-corrected COT when the cloud is homogeneous and optically thick. Retrieved aerosol properties have been compared with AeroCom modeled properties over the SEAO during the fire season 2006. This region is a good test bed for the representation of aerosols in cloudy skies in climate models: the absorbing biomass burning aerosols, frequently observed above clouds, are expected to have an important radiative impact that is currently poorly constrained.

Five AeroCom models have been compared to POLDER, using vertical profiles of the aerosol extinction, the aerosol absorption, and the CF. This analysis demonstrates that the properties of aerosols above clouds are associated with a large variability in the models. The ACAOT is underestimated by four of them, which is likely due to the vertical transport calibration and lower aerosol emission altitudes. This issue is currently analyzed through the Biomass Burning Emissions Experiments of the AeroCom Phase III. The comparison also reveals that models with more absorbing BC tend to better reproduce the low ACSSA observed by POLDER. By either underestimating the aerosol load or the aerosol absorption, all five models underestimate the ACAAOAT, suggesting an underestimation of the aerosol DRE over the SEAO. This study demonstrates the usefulness of POLDER retrievals in constraining key aerosol parameters in global aerosol models. The comparison notably highlights the importance of injection heights, vertical transport, and BC refractive index prescription in reproducing the aerosol optical properties above clouds over the SEAO.

The aerosol properties are not the only parameter that determines the aerosol DRE above clouds. The accurate knowledge of the cloud albedo is also important. When additional information about the cloud vertical profile is provided by the models (e.g., the liquid and the frozen water content and the COT), a comparison with POLDER will become possible since the ACA method allows the retrieval of the aerosol-corrected COT as well.

Finally, a global comparison of aerosol properties above clouds would increase the understanding of the factors responsible for model variability. However, the reliability of the method used to select aerosols above clouds in models has only been tested over the SEAO, where the stratocumulus layer is well defined. The use of the CF vertical profile to define the cloud layer becomes difficult for complex cloud covers such as mixed phase clouds or heterogeneous clouds. Once again, additional cloud information is necessary to perform such an analysis.

## References

- Bellouin, N., J. Rae, A. Jones, C. Johnson, J. Haywood, and O. Boucher (2011), Aerosol forcing in the Climate Model Intercomparison Project (CMIP5) simulations by HadGEM2-ES and the role of ammonium nitrate, *J. Geophys. Res.*, 116, D20206, doi:10.1029/2011JD016074.
- Bellouin, N., G. W. Mann, M. T. Woodhouse, C. Johnson, K. S. Carslaw, and M. Dalvi (2013), Impact of the modal aerosol scheme GLOMAP-mode on aerosol forcing in the Hadley Centre Global Environmental Model, *Atmos. Chem. Phys.*, 13(6), 3027–3044.
- Bond, T. C., and R. W. Bergstrom (2006), Light absorption by carbonaceous particles: An investigative review, *Aerosol Sci. Technol.*, 40(1), 27–67.
- Boucher, O., *et al.* (2013), 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*, edited by T. F. Stocker *et al.*, Cambridge Univ. Press, Cambridge, U.K., and New York.
- Chand, D., R. Wood, T. Anderson, S. Satheesh, and R. Charlson (2009), Satellite-derived direct radiative effect of aerosols dependent on cloud cover, *Nat. Geosci.*, 2(3), 181–184, doi:10.1038/ngeo437.
- Chin, M., R. B. Rood, S. J. Lin, J. F. Muller, and A. M. Thompson (2000), Atmospheric sulfur cycle simulated in the global model GOCART: Model description and global properties, *J. Geophys. Res.*, 105, 24,671–24,687, doi:10.1029/2000JD900384.

## Acknowledgments

The Chemical and Physical Properties of the Atmosphere project is funded by the French National Research Agency (ANR) through the Programme d'Investissement d'Avenir under contract ANR-11-LABX-0005-01 and by the Regional Council Nord-Pas de Calais and the European Funds for Regional Economic Development. This work was supported by the Programme National de Télédétection Spatiale (PNTS, <http://www.insu.cnrs.fr/pnts>), grant PNTS-2013-10. The authors are grateful to the CNES, NASA, and the ICARE data and services center. The Pacific Northwest National Laboratory is operated for DOE by Battelle Memorial Institute under contract DE-AC06-76RLO 1830. Authors are grateful to the Editor and the anonymous reviewer whose insightful comments helped improve the manuscript. The AeroCom database can be accessed by following the instructions on <http://aerocom.met.no/data.html>. POLDER products are available through the ICARE data and service center (<http://www.icare.univ-lille1.fr/>) and, for the data set used in this analysis, upon request to Fanny Peers (f.peers@exeter.ac.uk) or Fabien Waquet (fabien.waquet@univ-lille1.fr). The AERONET data are accessible via the web interface <http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>.

- Chin, M., P. Ginoux, S. Kinne, O. Torres, B. N. Holben, B. N. Duncan, R. V. Martin, J. A. Logan, A. Higurashi, and T. Nakajima (2002), Tropospheric aerosol optical thickness from the GOCART model and comparisons with satellite and Sun photometer measurements, *J. Atmos. Sci.*, 59, 461–483.
- Chin, M., T. Diehl, O. Dubovik, T. F. Eck, B. N. Holben, A. Sinyuk, and D. G. Streets (2009), Light absorption by pollution, dust, and biomass burning aerosols: A global model study and evaluation with AERONET measurements, *Ann. Geophys.*, 27(9), 3439.
- DeGraaf, M., L. Tilstra, P. Wang, and P. Stammes (2012), Retrieval of the aerosol direct radiative effect over clouds from spaceborne spectrometry, *J. Geophys. Res.*, 117, D07207, doi:10.1029/2011JD017160.
- DeGraaf, M., N. Bellouin, L. Tilstra, J. Haywood, and P. Stammes (2014), Aerosol direct radiative effect of smoke over clouds over the southeast Atlantic Ocean from 2006 to 2009, *Geophys. Res. Lett.*, 41, 7723–7730, doi:10.1002/2014GL061103.
- Dentener, F., et al. (2006), Emissions of primary aerosol and precursor gases in the years 2000 and 1750 prescribed data-sets for AeroCom, *Atmos. Chem. Phys.*, 6(12), 4321–4344.
- Devasthale, A., and M. A. Thomas (2011), A global survey of aerosol-liquid water cloud overlap based on four years of CALIPSO-CALIOP data, *Atmos. Chem. Phys.*, 11(3), 1143–1154.
- Ginoux, P., M. Chin, I. Tegen, J. M. Prospero, B. Holben, O. Dubovik, and S. J. Lin (2001), Sources and distributions of dust aerosols simulated with the GOCART model, *J. Geophys. Res.*, 106, 20,255–20,273, doi:10.1029/2000JD000053.
- Goloub, P., J. L. Deuzé, M. Herman, and Y. Fouquart (1994), Analysis of the POLDER polarization measurements performed over cloud covers, geoscience and remote sensing, *IEEE Trans.*, 32(1), 78–88, doi:10.1109/36.285191.
- Haywood, J. M., S. R. Osborne, P. N. Francis, A. Keil, P. Formenti, M. O. Andreae, and P. H. Kaye (2003), The mean physical and optical properties of regional haze dominated by biomass burning aerosol measured from the C-130 aircraft during SAFARI 2000, *J. Geophys. Res.*, 108(D13), 8473, doi:10.1029/2002JD002226.
- Jethva, H., O. Torres, L. Remer, and P. Bhartia (2013), A color ratio method for simultaneous retrieval of aerosol and cloud optical thickness of above-cloud absorbing aerosols from passive sensors: Application to MODIS measurements, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 51(7), 3862–3870, doi:10.1109/TGRS.2012.223008.
- Keil, A., and Haywood, J. M. (2003), Solar radiative forcing by biomass burning aerosol particles during SAFARI 2000: A case study based on measured aerosol and cloud properties, *J. Geophys. Res.*, 108(D13), 8467, doi:10.1029/2002JD002315.
- Kipling, Z., P. Stier, J. P. Schwarz, A. E. Perring, J. R. Spackman, G. W. Mann, C. E. Johnson, and P. J. Telford (2013), Constraints on aerosol processes in climate models from vertically-resolved aircraft observations of black carbon, *Atmos. Chem. Phys.*, 13(12), 5969–5986.
- Koffi, B., et al. (2012), Application of the CALIOP layer product to evaluate the vertical distribution of aerosols estimated by global models: AeroCom phase I results, *J. Geophys. Res.*, 117, D10201, doi:10.1029/2011JD016858.
- Meyer, K., S. Platnick, and Z. Zhang (2015), Simultaneously inferring above-cloud absorbing aerosol optical thickness and underlying liquid phase cloud optical and microphysical properties using MODIS, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120, 5524–5547, doi:10.1002/2015JD023128.
- Myhre, G., et al. (2007), Comparison of the radiative properties and direct radiative effect of aerosols from a global aerosol model and remote sensing data over ocean, *Tellus B*, 59(1), 115–129.
- Myhre, G., et al. (2009), Modelled radiative forcing of the direct aerosol effect with multi-observation evaluation, *Atmos. Chem. Phys.*, 9(4), 1365–1392.
- Myhre, G., et al. (2013a), Anthropogenic and Natural Radiative Forcing, 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*, edited by T. F. Stocker et al., Cambridge Univ. Press, Cambridge, U. K., and New York.
- Myhre, G., et al. (2013b), Radiative forcing of the direct aerosol effect from AeroCom Phase II simulations, *Atmos. Chem. Phys.*, 13(4), 1853–1877, doi:10.5194/acp-13-1853-2013.
- Peers, F., F. Waquet, C. Cornet, P. Dubuisson, F. Ducos, P. Goloub, F. Szczap, D. Tanré, and F. Thieuleux (2015), Absorption of aerosols above clouds from POLDER/PARASOL measurements and estimation of their direct radiative effect, *Atmos. Chem. Phys.*, 15(8), 4179–4196, doi:10.5194/acp-15-4179-2015.
- Pricope, N. G., and M. W. Binford (2012), A spatio-temporal analysis of fire recurrence and extent for semi-arid savanna ecosystems in southern Africa using moderate-resolution satellite imagery, *J. Environ. Manag.*, 100, 72–85.
- Saleh, R., et al. (2014), Brownness of organics in aerosols from biomass burning linked to their black carbon content, *Nat. Geosci.*, doi:10.1038/ngeo2220.
- Sayer, A. M., N. C. Hsu, T. F. Eck, A. Smirnov, and B. N. Holben (2014), AERONET-based models of smoke-dominated aerosol near source regions and transported over oceans, and implications for satellite retrievals of aerosol optical depth, *Atmos. Chem. Phys.*, 14(20), 11,493–11,523.
- Schultz, M., M. van het Bolscher, T. Pulles, R. Brand, J. Pereira, and A. Spessa (2007), RETRO report on emission data sets and methodologies for estimating emissions, Workpackage 1, Deliverable D1-6, 2007; EU-Contract No. EVK2-CT-2002-00170.
- Schulz, M., M. Chin, and S. Kinne (2009), The aerosol model comparison project, AeroCom, phase II: Clearing up diversity, IGAC Newsletter, (41).
- Schwarz, J. P., J. R. Spackman, R. S. Gao, L. A. Watts, P. Stier, M. Schulz, S. M. Davis, S. C. Wofsy, and D. W. Fahey (2010), Global-scale black carbon profiles observed in the remote atmosphere and compared to models, *Geophys. Res. Lett.*, 37, L18812, doi:10.1029/2010GL044372.
- Schwarz, J. P., B. H. Samset, A. E. Perring, J. R. Spackman, R. S. Gao, P. Stier, M. Schulz, F. L. Moore, E. A. Ray, and D. W. Fahey (2013), Global-scale seasonally resolved black carbon vertical profiles over the Pacific, *Geophys. Res. Lett.*, 40, 5542–5547, doi:10.1002/2013GL057775.
- Skeie, R. B., T. Berntsen, G. Myhre, C. A. Pedersen, J. Ström, S. Gerland, and J. A. Ogren (2011), Black carbon in the atmosphere and snow, from pre-industrial times until present, *Atmos. Chem. Phys.*, 11(14), 6809–6836.
- Stier, P., et al. (2005), The aerosol-climate model ECHAM5-HAM, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1125–1156, doi:10.5194/acp-5-1125-2005.
- Stier, P., et al. (2013), Host model uncertainties in aerosol radiative forcing estimates: Results from the AeroCom Prescribed intercomparison study, *Atmos. Chem. Phys.*, 13(6), 3245–3270, doi:10.5194/acp-13-3245-2013.
- Takemura, T., H. Okamoto, Y. Maruyama, A. Numaguti, A. Higurashi, and T. Nakajima (2000), Global three-dimensional simulation of aerosol optical thickness distribution of various origins, *J. Geophys. Res.*, 105(D14), 17,853–17,873, doi:10.1029/2000JD900265.
- Takemura, T., T. Nozawa, S. Emori, T. Y. Nakajima, and T. Nakajima (2005), Simulation of climate response to aerosol direct and in- direct effects with aerosol transport-radiation model, *J. Geophys. Res.*, 110, D02202, doi:10.1029/2004JD005029.
- Takemura, T., M. Egashira, K. Matsuzawa, H. Ichijo, R. Oishi, and A. Abe-Ouchi (2009), A simulation of the global distribution and radiative forcing of soil dust aerosols at the Last Glacial Maximum, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 3061–3073, doi:10.5194/acp-9-3061-2009.
- Tanré, D., F. Bréon, J. Deuzé, O. Dubovik, F. Ducos, P. François, P. Goloub, M. Herman, A. Lifermann, and F. Waquet (2011), Remote sensing of aerosols by using polarized, directional and spectral measurements within the A-Train: the PARASOL mission, *Atmos. Meas. Tech.*, 4(7), 1383–1395, doi:10.5194/amt-4-1383-2011.

- Torres, O., H. Jethva, and P. Bhartia (2012), Retrieval of aerosol optical depth above clouds from OMI observations: Sensitivity analysis and case studies, *J. Atmos. Sci.*, 69(3), 1037–1053, doi:10.1175/JAS-D-11-0130.1.
- Vanbauce, C., B. Cadet, and R. T. Marchand (2003), Comparison of POLDER apparent and corrected oxygen pressure to ARM/MMCR cloud boundary pressures, *Geophys. Res. Lett.*, 30(5), 1212, doi:10.1029/2002GL016449.
- Veira, A., S. Kloster, S. Wilkenskjeld, and S. Remy (2015a), Fire emission heights in the climate system—Part 1: Global plume height patterns simulated by ECHAM6-HAM2, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 15(5), 6645–6693.
- Veira, A., S. Kloster, N. A. J. Schutgens, and J. W. Kaiser (2015b), Fire emission heights in the climate system—Part 2: Impact on transport, black carbon concentrations and radiation, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 15(5), 6695–6744.
- Vignati, E., J. Wilson, and P. Stier (2004), M7: An efficient size-resolved aerosol microphysics module for large-scale aerosol transport models, *J. Geophys. Res.*, 109, D22202, doi:10.1029/2003JD004485.
- Waquet, F., J. Riedi, L. Labonne, P. Goloub, B. Cairns, J.-L. Deuzé, and D. Tanré (2009), Aerosol remote sensing over clouds using A-Train observations, *J. Atmos. Sci.*, 66(8), 2468–2480, doi:10.1175/2009JAS3026.1.
- Waquet, F., et al. (2013a), Retrieval of aerosol microphysical and optical properties above liquid clouds from POLDER/PARASOL polarization measurements, *Atmos. Meas. Tech.*, 6(4), 991–1016, doi:10.5194/amt-6-991-2013.
- Waquet, F., F. Peers, F. Ducos, P. Goloub, S. Platnick, J. Riedi, D. Tanré, and F. Thieuleux (2013b), Global analysis of aerosol properties above clouds, *Geophys. Res. Lett.*, 40, 5809–5814, doi:10.1002/2013GL057482.
- WCP (1986), A preliminary cloudless standard atmosphere.
- Zhang, K., et al. (2012), The global aerosol-climate model ECHAM-HAM, version 2: Sensitivity to improvements in process representations, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 8911–8949, doi:10.5194/acp-12-8911-2012.



# Consistency of aerosols above clouds characterization from A-Train active and passive measurements

Lucia T. Deaconu<sup>1</sup>, Fabien Waquet<sup>1</sup>, Damien Josset<sup>2</sup>, Nicolas Ferlay<sup>1</sup>, Fanny Peers<sup>3</sup>, François Thieuleux<sup>1</sup>,  
Fabrice Ducos<sup>1</sup>, Nicolas Pascal<sup>4</sup>, Didier Tanré<sup>1</sup>, Jacques Pelon<sup>5</sup>, and Philippe Goloub<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Université de Lille, CNRS, UMR 8518, LOA – Laboratoire d’Optique Atmosphérique, 59000 Lille, France

<sup>2</sup>US Naval Research Laboratory, NASA Stennis Space Center, 39529, Mississippi, USA

<sup>3</sup>College of Engineering, Mathematics and Physical Sciences, University of Exeter, Exeter, UK

<sup>4</sup>ICARE Data and Services Center, University of Lille, Villeneuve d’Ascq, 59655, France

<sup>5</sup>LATMOS, Université Paris, (CNRS-UVSQ), Paris 75005, France

Correspondence to: Lucia T. Deaconu (lucia-timea.deaconu@ed.univ-lille1.fr)  
and Fabien Waquet (fabien.waquet@univ-lille1.fr)

Received: 10 February 2017 – Discussion started: 13 March 2017

Revised: 20 July 2017 – Accepted: 1 August 2017 – Published: 22 September 2017

**Abstract.** This study presents a comparison between the retrieval of optical properties of aerosol above clouds (AAC) from different techniques developed for the A-Train sensors CALIOP/CALIPSO and POLDER/PARASOL. The main objective is to analyse the consistency between the results derived from the active and the passive measurements. We compare the aerosol optical thickness (AOT) above optically thick clouds (cloud optical thickness (COT) larger than 3) and their Ångström exponent (AE). These parameters are retrieved with the CALIOP operational method, the POLDER operational polarization method and the CALIOP-based depolarization ratio method (DRM) – for which we also propose a calibrated version (denominated DRM<sub>SODA</sub>, where SODA is the Synergized Optical Depth of Aerosols). We analyse 6 months of data over three distinctive regions characterized by different types of aerosols and clouds. Additionally, for these regions, we select three case studies: a biomass-burning event over the South Atlantic Ocean, a Saharan dust case over the North Atlantic Ocean and a Siberian biomass-burning event over the North Pacific Ocean. Four and a half years of data are studied over the entire globe for distinct situations where aerosol and cloud layers are in contact or vertically separated. Overall, the regional analysis shows a good correlation between the POLDER and the DRM<sub>SODA</sub> AOTs when the microphysics of aerosols is dominated by fine-mode particles of biomass-burning aerosols from southern Africa (correlation coefficient ( $R^2$ ) of 0.83) or

coarse-mode aerosols of Saharan dust ( $R^2$  of 0.82). A good correlation between these methods ( $R^2$  of 0.68) is also observed in the global treatment, when the aerosol and cloud layers are separated well. The analysis of detached layers also shows a mean difference in AOT of 0.07 at 532 nm between POLDER and DRM<sub>SODA</sub> at a global scale. The correlation between the retrievals decreases when a complex mixture of aerosols is expected ( $R^2$  of 0.37) – as in the East Asia region – and when the aerosol–cloud layers are in contact ( $R^2$  of 0.36). The correlation coefficient between the CALIOP operational method and POLDER is found to be low, as the CALIOP method largely underestimates the aerosol loading above clouds by a factor that ranges from 2 to 4.

Potential biases on the retrieved AOT as a function of cloud properties are also investigated. For different types of scenes, the retrieval of above-cloud AOT from POLDER and from DRM are compared for different underlying cloud properties (droplet effective radius ( $r_{\text{eff}}$ ) and COT retrieved with MODIS). The results reveal that DRM AOT vary with  $r_{\text{eff}}$ . When accounting for  $r_{\text{eff}}$  in the DRM algorithm, the consistency between the methods increases. The sensitivity study shows that an additional polarized signal coming from aerosols located *within* the cloud could affect the polarization method, which leads to an overestimation of the AOT retrieved with POLDER algorithm. In addition, the aerosols *attached* to or *within* the cloud can potentially impact the DRM retrievals through the modification of the cloud droplet

chemical composition and its ability to backscatter light. The next step of this work is to combine POLDER and CALIOP to investigate the impacts of aerosols on clouds and climate when these particles are transported above or within clouds.

## 1 Introduction

By interacting with radiations and by modifying the cloud reflectivity and microphysics, aerosols have important impacts on the Earth's radiative budget and water cycle (IPCC, 2013). These atmospheric particles absorb and scatter the sunlight, resulting in the so-called direct radiative effect (DRE). Although aerosols always produce a cooling effect at the Earth's surface, the sign and the amplitude of the DRE of aerosols at the top of the atmosphere depend not only on the aerosol properties but also on the reflective properties of underlying surface. For instance, in cases where absorbing aerosol layers are located above clouds, the DRE of aerosols is predominantly positive as a result of the reduction of the local planetary albedo (Keil and Haywood, 2003). By absorbing sunlight, aerosols also warm the layer of the atmosphere where they reside. This modifies the vertical profile of temperature in the atmosphere, which may affect the process of evaporation and cloud formation. This effect is called the semi-direct effect (Hansen et al., 1997; Ramanathan et al., 2001). Aerosols also impact the cloud properties by acting as cloud condensation nuclei and ice nuclei. They may modify the cloud microphysics and cloud brightness with potential impacts on precipitation and cloud lifetime (Rosenfeld, 2000; Twomey, 1974). These effects are referred as aerosol indirect effects and tend to cool the Earth.

The lack of knowledge of aerosol properties in cases of scenes of aerosols above clouds (AAC) has been recently highlighted as a source of uncertainty for the estimation of all-sky DRE of aerosols (Peers et al., 2016). Different approaches have been developed to quantify the DRE of AAC using satellite observations (Chand et al., 2009; Feng and Christopher, 2015; Meyer et al., 2013). But despite recent observational and modelling studies (De Graaf et al., 2014; Peers et al., 2015, 2016; Zhang et al., 2016), the aerosol DRE for AAC remains a subject of large uncertainty. In the process of quantification and interpretation of the aerosol impact on climate, the aerosol interactions with clouds constitute the largest uncertainty in global climate models (Myhre et al., 2013a, b). The study of AAC may also contribute to reduce those uncertainties. For instance, in case of absorbing AAC, the warming of the atmosphere occurring above stratocumulus clouds might reduce the strength of the convection and consequently impact the vertical development and the cloud properties. This warming might inhibit the entrainment of dry air at the top of the cloud, preserving the humidity of the cloud and increasing the liquid water content and the persistence of clouds (Johnson et al., 2004; Wilcox, 2010). Evi-

dence of the first indirect effect was also found over the South Atlantic region, where AAC events are frequently observed. Costantino and Bréon (2013) notably found a strong decrease in the droplet effective radius when the aerosol layers are in contact with the top altitude of the cloud deck.

The scientific community is working on better monitoring the load and microphysical properties of AAC in order to assess the influence of those particles on the Earth's radiative budget and clouds. The constellation of satellites called the A-Train provides different passive and active sensors for monitoring clouds and aerosols (<http://atrain.nasa.gov/publications/A-TrainFactSheet.pdf>). Passive imagers offer larger spatial coverage but have no direct information of the vertical distribution of particles in the atmosphere. Active methods offer unique capabilities, complementary to the passive methods, and are dedicated to the study of the vertical profiles of clouds and aerosols. The main retrieved optical properties for aerosols, in "clear-sky" conditions, are the aerosol optical thickness (AOT) and the Ångström exponent (AE), which is a parameter indicative of the particles size (Kaufman et al., 2002). Recent methods also allow retrieving the aerosol single scattering albedo (SSA) over clear-sky ocean scenes (Torres et al., 2013; Waquet et al., 2016).

The active sensor Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization (CALIOP) installed on CALIPSO (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation) satellite provides high-resolution vertical profiles of aerosols and clouds (Chand et al., 2008; Winker et al., 2010). CALIOP provides the total attenuated backscatter signal ( $\text{km}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ ) at 532 and 1064 nm. From the backscatter measurements, an operational aerosol algorithm allows for retrieval of the vertical extinction profiles as well as the AOT in clear and cloudy skies by assuming an aerosol lidar ratio (extinction to backscatter) (Omar et al., 2009; Young and Vaughan, 2009). Moreover, two orthogonally polarized channels measure the parallel and perpendicular backscatter signal at 532 nm that allows calculating the depolarization ratio (i.e. the ratio of the two orthogonal polarization signals) (Hunt et al., 2009). Depolarization measurements are used for discrimination between spherical and non-spherical particles (Sassen, 1991). CALIOP provides exhaustive details on the vertical distribution of optical and microphysical properties of aerosols and clouds, including their shape, and a qualitative classification of aerosol type (via the wavelength dependence of the backscatter) (Winker et al., 2009; Young and Vaughan, 2009).

Alternative CALIOP-based research methods have also been introduced to retrieve above-cloud AOT (ACAOT). The depolarization ratio method (DRM) (Hu et al., 2007a) and the colour ratio method (CRM) (Chand et al., 2008) use fewer assumptions for the retrieval of aerosol properties. These methods are based on light transmission methods and treat the liquid water clouds situated underneath the aerosol layer as a target. Hu et al. (2007b) have shown that, in the case of opaque water clouds, the layer-integrated attenuated

backscatter at 532 nm and layer-integrated attenuated depolarization ratio at 532 nm can be used to retrieve the aerosol optical depth of the overlaying aerosol or optically thin cloud layers. The CRM uses the layer-integrated attenuated colour ratio, which is the ratio of integrated attenuated backscatter at 1064 to 532 nm. Over the visible to near-infrared spectral region, fine-mode absorbing aerosols above clouds exhibit a strong wavelength dependence colour ratio (Chand et al., 2008). This makes possible the detection of absorbing biomass-burning aerosols transported above clouds. The colour ratio observed in the case of coarse-mode particles or purely scattering fine-mode aerosols transported above clouds exhibits little or no wavelength dependence and, thus, these particles can be less accurately detected with the CRM method.

Passive sensors have also been used to obtain information on aerosols above clouds. For example, Torres et al. (2012) have developed an algorithm to retrieve the ACAOT and the underlying aerosol-corrected cloud optical depth, using radiance measurements performed in the ultraviolet (UV) by the Ozone Monitoring Instrument (OMI). The method takes advantage of the ability of biomass-burning and mineral dust aerosols to strongly absorb UV radiations. Another method that can retrieve the ACAOT and, simultaneously, the aerosol-corrected cloud optical thickness (COT) is the “colour ratio” method proposed by Jethva et al. (2013) that employs measurements in visible and shortwave infrared channels from the Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS). Also, Meyer et al. (2015) developed an algorithm that employs reflectance measurements from six MODIS channels (from the visible to the shortwave infrared) to retrieve the ACAOT, as well as the COT and droplet effective radius ( $r_{\text{eff}}$ ) of the underlying cloud.

The multi-directional polarization measurements have shown sensitivity to AAC scenes (Waquet et al., 2009; Hasekamp, 2010; Knobelgespiele et al., 2011). The Polarization and Directionality of Earth Reflectances (POLDER) instrument is measuring the directionality and polarization of light reflected by the Earth–atmosphere system. The aerosols generate an additional polarized light at forward and side scattering angles (70–130°) and reduce the polarized signal of the cloud bow (i.e. a strong polarized rainbow feature observed near 140° in scattering angle). Mineral dust particles do not much polarize light, but they strongly minimize the cloud bow magnitude. Based on these effects, Waquet et al. (2009) have developed a method for retrieving the properties of aerosols above clouds that relies on the polarized radiances measured by POLDER. Because polarized radiances are not affected by the optical thickness of the cloud (i.e. the polarized radiance reflected by the cloud is saturated when the cloud is optically thick enough), the method is able to retrieve the scattering ACAOT at two wavelengths (670 and 865 nm) without much assumption about cloud properties. An analysis of the global results obtained with the operational algorithm is given in Waquet et al. (2013a). Further-

more, Peers et al. (2015) have developed a complementary method that uses additional total multidirectional radiances measured by POLDER. The method provides the aerosol SSA and the aerosol-corrected COT. So far, the algorithm of Peers et al. (2015) is a research method, only applied for regional studies (Peers et al., 2016).

Jethva et al. (2014) performed an intercomparative analysis of the ACAOT retrieved with the aforementioned methods in order to assess the consistency (or lack thereof) between the two independently derived ACAOTs. The results were encouraging and, despite the use of different assumptions and measurements, a close agreement was reported over homogeneous clouds. Similar to this study, our paper will focus on the comparison between collocated active and passive AAC inversion products, improving our understanding of the ACAOT. But, compared to Jethva et al. (2014), who focused only on two study cases, we perform a global and multi-annual investigation to provide robust statistics results. The vertical distribution of the aerosol and cloud layer will be also considered. We will concentrate on the following methods: (a) the CALIOP operational method (CALIOP<sub>OM</sub>) because of the numerous studies in which it was used, (b) the DRM developed by Hu et al. (2007a), (c) a calibrated version of the DRM algorithm and (d) the POLDER polarization method. The DRM and POLDER methods were chosen because both are measuring AAC properties above the same type of cloudy scenes (i.e. optically thick and homogeneous liquid water clouds). Moreover, both techniques are sensitive to all types of particles (scattering or absorbing particles, fine or coarse ones), which is not the case for CRM, which can operate only for absorbing aerosols. It is also interesting to compare these two approaches since the POLDER method requires a hypothesized aerosol microphysics, while DRM does not require any hypothesis for the aerosols but does require assumptions and an approximate model to estimate the signal backscattered by clouds.

To begin with, we briefly recall the principle of each algorithm and the data selection strategy. The results of AOT intercomparison are presented in Sects. 3 and 4. We first present a regional comparison and then describe a global comparison for a period of 4.5 years in function of the type of aerosols and AAC scenes (aerosol and cloud layers in contact or well separated). Discussions and conclusions will be drawn in Sects. 5 and 6.

## 2 Methodology and data selection

### 2.1 POLDER polarization method

POLDER, an instrument on the PARASOL (Polarization and Anisotropy of Reflectances for Atmospheric Science coupled with Observations from a Lidar) satellite, is a wide-field imaging radiometer/polarimeter (Tanré et al., 2011). This instrument measures the angular and spectral behaviour of

the normalized total and polarized radiances (Herman et al., 2005).

The method for retrieving the above-cloud scattering AOT developed by Waquet et al. (2013b) consists of a comparison between polarized radiances measured by POLDER at 670 and 865 nm and polarized radiances pre-computed with a successive order of scattering (SOS) code (Deuzé et al., 1989) for seven aerosol models that follow a single log-normal size distribution. Six models correspond to spherical aerosols (fine-mode particles) with radius from 0.06 to 0.16  $\mu\text{m}$ , for which a complex refractive index of  $1.47 - 0.01i$  is assumed. The seventh model is bimodal and characteristic of non-spherical aerosols (dust) with a refractive index of  $1.47 - 0.0007i$ . In the search for the best-fitting aerosol model, the operational algorithm follows the strategy described by Waquet et al. (2013b). After a first step, the algorithm produces an approximation of the AOT at 865 nm. As a function of this AOT value, a decision tree is applied: if the AOT is larger than 0.1 then the algorithm will search the best-fitting model within all the seven models without any angular constraint for the selection of the POLDER data (scattering angle ranging from 0 to  $180^\circ$ ). Next, if the mineral dust model fails to reproduce the data or if the AOT retrieved in the first step is smaller than 0.1, then only fine-mode models are considered in the retrieval scheme and the viewing geometries are restricted to side or forward viewing geometries (scattering angles smaller than  $130^\circ$ ). The AOT threshold of 0.1 at 865 nm is empirical and was introduced since the retrieval of the aerosol type (dust or fine-mode particles) becomes difficult for small AOT.

Collocated cloud properties retrieved from MODIS at high resolution ( $1 \times 1 \text{ km}^2$  at nadir) are used to characterize and to select the cloudy scenes within a POLDER pixel ( $6 \text{ km} \times 6 \text{ km}$  at nadir). We only consider fully covered cloudy pixels associated with optically thick liquid water clouds: the COT retrieved by MODIS has to be larger than 3 and a cloud phase algorithm is applied to select liquid water clouds (Riedi et al., 2010). Moreover, Waquet et al. (2013b) have introduced a mask to eliminate cirrus above liquid clouds that makes use of the MODIS brightness temperature difference (BTD) between 8.5 and 11  $\mu\text{m}$  wavelength bands as well as MODIS and POLDER cloud top pressure estimates. Lastly, the AOT retrievals at the  $6 \text{ km} \times 6 \text{ km}$  spatial resolution are aggregated to  $18 \text{ km} \times 18 \text{ km}$  spatial grid. The retrieved solution is kept if the number of  $6 \text{ km} \times 6 \text{ km}$  pixels is larger than 5 and if the standard deviation computed for the mean AOT is smaller than 0.1. This latter procedure allows to remove edges of clouds. In our study, we use the version 3.00 of the official output product PARASOL\_PM02-L2 for AAC scenes available at ICARE website (<http://www.icare.univ-lille1.fr/parasol/products/>).

## 2.2 CALIOP methods

### 2.2.1 Operational method

The CALIPSO lidar (CALIOP) is a frequency-doubled Nd:YAG laser, dual-wavelength, dual-polarization, elastic backscatter lidar (Winker et al., 2009). The lidar returned signal is normalized and range-corrected to provide the total attenuated backscatter coefficient ( $\text{km}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ ).

In order to retrieve the attenuated backscatter data and the columnar AOT at 532 and 1064 nm, the operational CALIOP algorithm combines the feature and layer detection scheme (Vaughan et al., 2009) with the extinction retrieval algorithm (Young and Vaughan, 2009) that employs assumptions on the extinction-to-backscatter ratio of aerosols. There are several steps involved in the operational data processing: (1) cloud and aerosol layers are detected in the backscattered signal along with their altitudes; (2) the algorithm determines which layers have cloud or aerosol features; (3) the cloud ice-water phase is estimated and the aerosol lidar ratio is determined, using assumptions on the aerosol models; and finally (4) the extinction coefficients and AOT are retrieved at 532 and 1064 nm.

Lidar systems have a limited capability to determine the composition and size of aerosols. Hypotheses are then used on the aerosol phase function at  $180^\circ$  and on the aerosol SSA in order to calculate the aerosol lidar ratio. In the operational algorithm, the aerosol models consist in a mixture of aerosol components characteristic of a region or an air mass. It should be noted that an incorrect assumption for the lidar ratio could be a source of substantial errors in the AOT retrieved with this method.

For our study we use the level 2 version 3.01 of the inversion products, officially named CAL\_LID\_L2\_05kmALay (ALay) and CAL\_LID\_L2\_05kmCLay (CLay) (which can be found at <http://www.icare.univ-lille1.fr/calipso/products/>), which provide, respectively, the aerosol and cloud layer parameters at a nominal horizontal resolution of 5 km. From these products we used the AOTs retrieved at 532 and 1064 nm, the aerosol base and top altitudes, the cloud top altitude, the ice-water cloud phase and the feature type. We also use CALIOP level 1 dataset, labelled CAL\_LID\_L1-ValStage1 (link above), which provides the attenuated backscatter coefficient calculated at a vertical resolution of 30 m from  $-0.5$  to  $8.2 \text{ km}$  altitude and at 333 m horizontal resolution (Winker et al., 2007).

### 2.2.2 Depolarization ratio method

For retrieving the optical thickness of a thin high layer (aerosols or clouds) above a lower and optically thick water cloud layer, Hu et al. (2007a) and Chand et al. (2008) describe the depolarization ratio method applied to CALIOP measurements. An opaque cloud with a minimum optical depth of 3 will attenuate the lidar beam completely. For op-

tically thick clouds, we estimate the optical thickness of the above thin aerosol or cloud layer by treating the opaque cloud as a target and by using the Beer–Lambert law to estimate the direct transmission of light above this cloud layer. We will refer to this product hereafter as  $\text{DRM}_{\text{Hu}}$ .

The physical properties used in this method are the cloud attenuated backscatter coefficient ( $\gamma'_{\text{water}}$ ) integrated from the base to the top of the cloud layer at 532 nm and the integrated attenuated depolarization ratio ( $\delta'$ ) at 532 nm. When Rayleigh scattering contribution has been corrected for, the definition of  $\gamma'_{\text{water}}$  is given by the following equation:

$$\gamma'_{\text{water}} = \int_{z_{\text{top}}}^{z_{\text{base}}} \beta'(z) dz, \quad (1)$$

where  $\beta'$  is the total attenuated backscatter coefficient ( $\text{km}^{-1} \text{sr}^{-1}$ ).

In situations where the cloud is optically thick and there are no aerosols above the cloud, the lidar equation simplifies to the following definition, expressed as a function of the lidar ratio ( $S_c$ ) and layer-effective multiple scattering factor ( $\eta_c$ ) (Platt, 1979):

$$\gamma'_{\text{water, calc}} = \int_{z_{\text{top}}}^{z_{\text{base}}} \beta'(z) dz = (2\eta_c S_c)^{-1}. \quad (2)$$

$S_c$  is narrowly constrained to about 19 sr at a wavelength of 532 nm. This value is typically used for liquid water clouds with droplets smaller than about 50  $\mu\text{m}$  (O'Connor et al., 2004; Pinnick et al., 1983).  $\eta_c$ , which takes a value between 0 and 1, is strongly related to the cloud depolarization ratio  $\delta'$  (defined as the ratio of the parallel and perpendicular polarization signals), since multiple scattering processes tend to depolarize light. An approximate relation was derived from Monte Carlo simulations (Hu et al., 2006):

$$\eta_c = \left( \frac{1 - \delta'}{1 + \delta'} \right)^2. \quad (3)$$

After  $\gamma'_{\text{water}}$  is corrected for molecular and gaseous attenuation, the ratio between  $\gamma'_{\text{water}}$  and  $\gamma'_{\text{water, calc}}$  should be equal to 1 in the absence of higher aerosol or cloud layer and have an accurate lidar calibration. Instead, in case of an overlying aerosol or cloud layer, this ratio can be written as

$$\frac{\gamma'_{\text{water}}}{\gamma'_{\text{water, calc}}} = T^2 = \exp(-2\tau_{\text{top, DR}}), \quad (4)$$

where  $T^2$  is the transmission of light after a two-way propagation between the sensor and the targeted cloud, and  $\tau_{\text{top, DR}}$  is the higher layer's optical thickness. It follows from Eq. (4) that the optical depth ( $\tau_{\text{top, DR}}$ ) is given by

$$\tau_{\text{top, DR}} = \frac{-1}{2} \ln(2S_c \gamma'_{\text{water}} \eta_c). \quad (5)$$

$\text{DRM}_{\text{Hu}}$  differs from the operational method by the fact that it does not rely on assumptions related to aerosol microphysical properties (aerosol phase function and SSA) and does not require accurate layer detection for the overlying aerosol layer in order to estimate the AOT integrated over the atmospheric column. The main uncertainties of the  $\text{DRM}_{\text{Hu}}$  are linked to the calibration of the lidar, which impact the estimate of the parameters in Eq. (5).

Providing a robust, self-calibrated method at global scale and for the whole CALIPSO dataset is not trivial and, in order to improve the estimate of the AOT with the DR method, the developers of the Synergized Optical Depth of Aerosols and ICE clouds (SODA & ICE, available at the ICARE thematic centre), Josset et al. (2010, 2012), modified the original formalism of  $\text{DRM}_{\text{Hu}}$ . The main reason for these modifications is that the relationship between the multiple scattering factor and the depolarization by the cloud shows a systematic deviation from the theory (see Fig. 2 in Hu, 2007). The multiple scattering–depolarization relationship has been confirmed by laboratory experiments (Cao et al., 2009). Even if it has to be modified in the presence of submicrometer or non-spherical particles, the origin of the discrepancy between theory and observation points towards an instrumental issue. The long transient response of the receiver has been proposed as an explanation and a correction was also proposed (Hu et al., 2007b). There are, however, other issues related to the calibration of the polarization channel that could explain the discrepancy. The low gain–high gain merging scheme and the day–night calibration transfer are a significant source of uncertainty. Previous research (Sassen and Zhu, 2009) found a bias in the linear depolarization of cirrus clouds of around 30 %.

In order to overcome these difficulties and improve the accuracy of the method, SODA takes advantage of the high number of CALIOP observations of liquid water clouds in the absence of AAC. Practically, the SODA algorithm introduces global-scale correction factors in the multiple scattering coefficient to depolarization relationship and a recalibrated value of the liquid water cloud lidar ratio as a function of latitudes. These two corrections come from the fact that, when the liquid water clouds are optically dense and in absence of AAC, the lidar equation can be reduced to Eq. (2). Over the ocean, the lidar ratio of most liquid water clouds is relatively constant (Hu et al., 2006) and the multiple scattering coefficient can be measured directly if the lidar is well calibrated. This correction follows the original intent of  $\text{DRM}_{\text{Hu}}$  (Hu et al., 2007a), which has always been to be a self-calibrated method, unaffected by instrumental or geophysical uncertainties (see Eq. 4 of Hu et al., 2007a, and related discussion). However, because the discrepancy between theory and observations is due to an instrumental artefact linked to the receiver electronics, SODA introduces a clearer separation between the parallel and perpendicular channel than in  $\text{DRM}_{\text{Hu}}$  (Hu et al., 2007b).  $\text{DRM}_{\text{Hu}}$  relates the total backscatter coefficient to the ratio of perpendicu-

lar and parallel backscatter coefficient while SODA links the parallel backscatter coefficient to this ratio. This approach is supported by the theory of light propagation in dense medium where the contribution of multiple scattering to the perpendicular and parallel channel is identical (Xu and Al-fano, 2005) and by the analysis of CALIOP data.

A preliminary and mandatory step of the calibration procedure is to select optically opaque liquid water clouds with no AAC. The calibration modules of SODA use the following criteria. Note that there is some level of redundancy in order to increase data quality selection.

a. Criteria of optical density:

- The top and bottom of the cloud is given by the 333 m CALIPSO cloud product. This ensures a minimum level of signal strength and the presence of a transparent atmosphere above it. Note that SODA corrects the molecular attenuation above the cloud but does not contain an explicit correction of it within the cloud because of the high scattering ratio of liquid water clouds. Nonetheless, the molecular contribution is statistically taken into account by the calibration procedure.
- The maximum of the lidar signal is above the base of the cloud. This ensures an adequate level of attenuation of the surface return.
- The ocean surface integrated attenuated backscatter is below a detectability threshold of  $7.5 \times 10^{-6} \text{ sr}^{-1}$  for nighttime data and  $1 \times 10^{-3} \text{ sr}^{-1}$  for daytime data. This corresponds to a COT of around 2 during daytime and 4–5 during nighttime, which is when this filter is the most useful. The intent of this threshold is the same as the previous criteria. More specifically, the goal is to use a threshold such that half the shots are below the noise sensitivity of the instrument.

b. Criteria of cloud in liquid phase:

- The temperature at the top of the cloud is higher than 0 °C. The isotherm is defined by the GMAO (Global Modelling and Assimilation Office) temperature when interpolated on the CALIPSO vertical grid.
- The total cloud liquid water contained in a vertical column of atmosphere retrieved from collocated pixels of AMSR-E/AMSR2 is larger than 0 mm.

c. Criteria of clear air above the cloud:

- The total 532 nm integrated attenuated backscatter coefficient from 20 km of altitude to the top of the cloud is below the following threshold:

$$\int_{z_{\text{top}}}^{20 \text{ km}} \beta'(z) dz < \frac{1 - \exp(-2\tau_{\text{air,mol}})}{2^{\frac{8\pi}{3}} 1.5}, \quad (6)$$

where  $\tau_{\text{air,mol}}$  is the optical depth due to air Rayleigh scattering and ozone absorption. The factor of 1.5 allows the reduction of occurrences of false positives due to noise. It also allows us to simplify the formalism as the King factor (Bates, 1984; King, 1923) can be neglected with no expected impact on the results. As this filter introduces more aerosol contamination during daytime (similar to Josset et al., 2010, Fig. 4), it could be desirable to consider the shot-to-shot CALIOP cloud mask for future version of the algorithm as SODA already uses this information for the scene classification flag.

As previously mentioned, even if the multiple scattering–depolarization relationship has been confirmed by laboratory experiments (Cao et al., 2009), the relationship between the multiple scattering factor and the depolarization by the cloud shows a systematic deviation from the theory. It has to be corrected, as it would introduce a bias in aerosol optical depth with the particularly undesirable trait to correlate with cloud microphysical properties. As a first step, SODA calibrates the multiple scattering to depolarization relationship for nighttime data on a monthly basis. The data of interest are based on Eq. (2) and can be written as

$$\eta_{\text{geo}} = \frac{1}{2 \times 19 \times \gamma'_{\text{water,parallel}}}, \quad (7)$$

where  $\gamma'_{\text{water,parallel}}$  is the parallel-integrated backscatter coefficient. This equation provides a direct measurement of the multiple scattering coefficient of liquid water clouds ( $\eta_{\text{geo}}$ ) when their lidar ratio is constant. The constant value of 19 sr used in the SODA algorithm is based on Hu et al. (2006), who found a lidar ratio equal to  $19.1 \pm 0.21$  sr when the 41 droplet size distributions of Miles et al. (2000) are used as inputs of a Mie scattering code.

For all opaque liquid water clouds defined with the above criteria, SODA then compares the direct measurement of the multiple scattering coefficient ( $\eta_{\text{geo}}$ ) and the theory ( $\eta_c$ ) to find the second-order polynomial that best fit the data in the least-squares fit sense. This defines the calibrated multiple scattering coefficient ( $\eta_{\text{calibr}}$ ):

$$\eta_{\text{calibr}} = \text{fit} [\eta_{\text{geo}} (\eta_c)] = A\eta_c + B\eta_c^2. \quad (8)$$

This procedure allows us to use a relationship between depolarization and multiple scattering that fits the observation.

Using Eq. (3) instead of Eq. (8) would create an aerosol optical depth bias that would typically range between 0.02 and 0.08. Although this is not always significant, this correction is necessary as the resulting ACAOT bias does correlate with the cloud's microphysical properties. This is particularly undesirable as the link between aerosol and cloud microphysical properties is an active topic of research.

As a second step, SODA calculates the apparent lidar ratio  $S_{c,\text{lat}}$  of all opaque liquid water clouds as a function of each degree of latitude and for both 532 and 1064 nm. This procedure is done separately for daytime and nighttime data. The latitudinal dependency aims to correct the calibration inaccuracies of CALIOP, which are dependent on latitude (Powell et al., 2010) and possible geophysical variations of cloud microphysical properties between the northern and southern hemispheres.

$$S_{c,\text{lat}} = \frac{1}{2 \times \eta_{\text{calibr}} \times \gamma'_{\text{water,parallel}}} \quad (9)$$

For the 4.5 years of data we considered in this study, the median of  $S_{c,\text{lat}}$  for the nighttime data is 19.36 sr, which is interestingly close from the theoretical value determined by Hu et al. (2006). For daytime data,  $S_{c,\text{lat}}$  is systematically higher and with a median of 20.64 sr. The systematic daytime–nighttime difference could be geophysical. However, it is premature to reach such conclusion until all nighttime–daytime differences in the CALIPSO data have been addressed.

Lastly, all these coefficients are finally integrated in the AOT retrieval equation:

$$\tau_{\text{top,DRcalibr}} = -\frac{1}{2} \ln (2S_{c,\text{lat}} \eta_{\text{calibr}} \gamma'_{\text{water,parallel}}), \quad (10)$$

Throughout this study, we will refer to this product as  $\text{DRM}_{\text{SODA}}$ , which can be found at ICARE Data and Services Center (<http://www.icare.univ-lille1.fr/projects/soda/>).

## 2.3 Data selection

### 2.3.1 Collocation

The A-Train satellites pass through close orbits within several minutes, providing coincident observations of POLDER, MODIS and CALIOP instruments. Using the nearest pixel approximation, CALIOP files are used as a space reference for sampling POLDER and MODIS products. CALTRACK is the output dataset and can be found at ICARE. It contains coincident data from POLDER at 18 km × 18 km and MODIS, extracted under the CALIOP track at 5 km horizontal resolution. The  $\text{DRM}_{\text{Hu}}$  and  $\text{DRM}_{\text{SODA}}$  optical depth retrievals are processed at the CALIOP native resolution of 333 m and aggregated afterwards at 5 km horizontal resolution. Moreover, for a better consistency of the AOT comparison, the POLDER AOT was extrapolated at 532 nm using the AE retrieved with the POLDER algorithm.

We also limited the cloud top altitude at 5 km because we are interested in low-level clouds. Likewise, we eliminated from our data analysis all situations in which the aerosol top altitude exceeds 10 km. This maximal value should be sufficient, since most of the biomass-burning and dust aerosol layers are typically observed between 0.5 and 4.0 km over ocean (Torres et al., 2013).

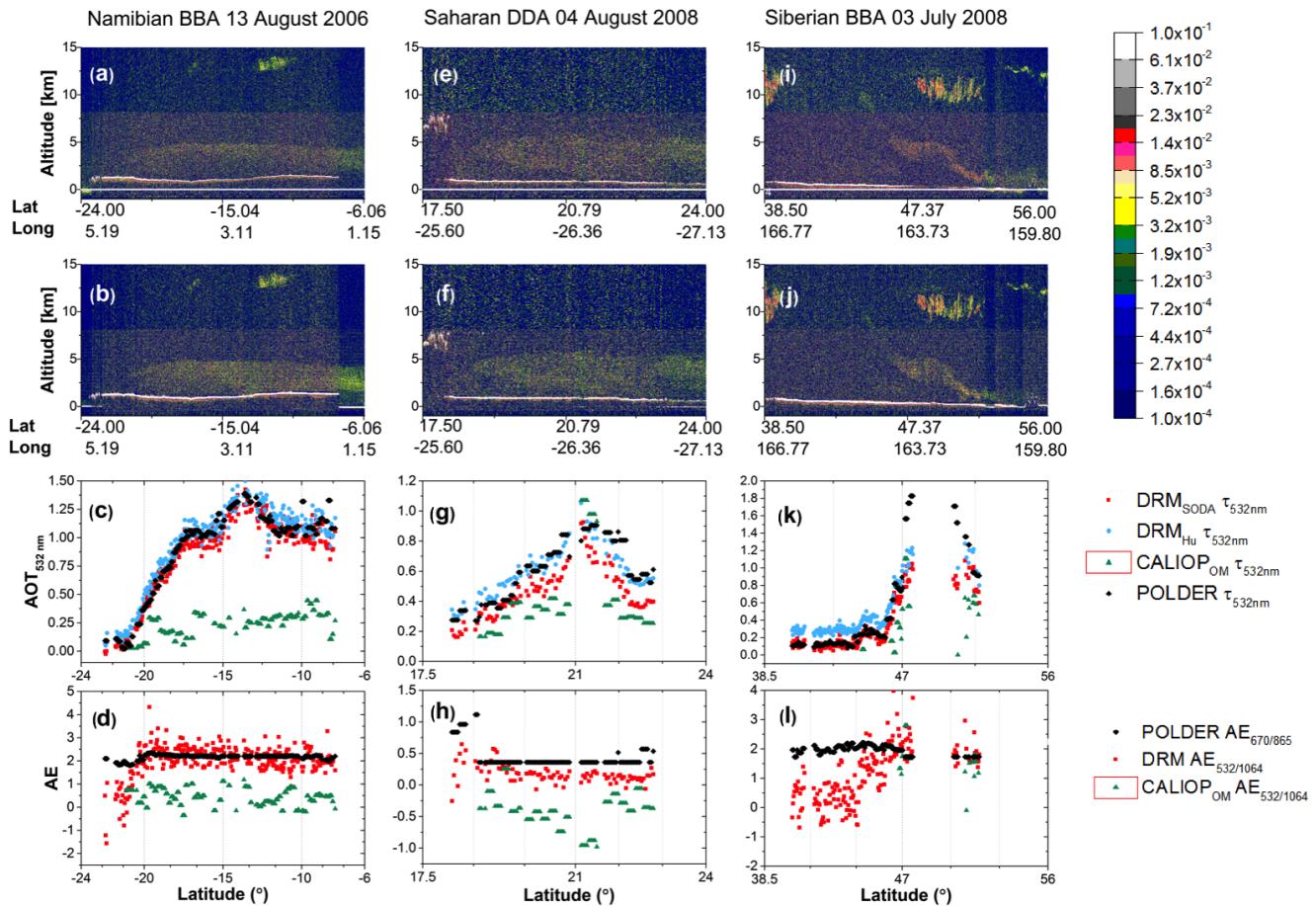
### 2.3.2 Distinction between vertical profiles

Additionally, we have employed an approach that is similar to the concept of Costantino and Bréon (2013) to classify the type of AAC scenes. The respective positions of the aerosol and cloud layers are defined using the CALIOP ALay and CLay products. We classify the AAC scenes into three categories: “attached”, “detached” and “undetermined”. The so-called “attached cases” correspond to situations where the aerosol layer touches the top of the beneath cloud layer. For these cases, we assume that the vertical distance of the aerosol bottom altitude from cloud top altitude must be lower than 100 m, without penetrating the cloud layer for more than 50 m. Inversely, the “detached cases” correspond to aerosol and cloud layers that are considered well separated, considering a distance higher than 500 m between the aerosol base altitude and the cloud top. Aerosol layers with the base altitude within a distance between 100 and 500 m above the cloud layer are considered too uncertain and are excluded from our study. We also removed the situations for which the detected CALIOP aerosol top and/or bottom altitudes are located below the cloud top, assuming that these data are highly uncertain. Practically, we rejected the CALIOP data for which the aerosol layer penetrates the cloud layer by more than 50 m. The third category, “undetermined”, corresponds to situations for which the respective position of the aerosol or cloud layer is not identified by the CALIOP layer detection algorithm (i.e. missing data), even though POLDER and DRM AAC AOT retrievals are valid. We chose to keep these data in our analysis as they cover the majority of POLDER AAC detected cases with a non-negligible AOT (even if CALIOP classifies them as invalid or noise), as the purpose of the paper is to better understand the differences between the methods.

We also distinguish the “two-layer situation” (i.e. one aerosol layer and one cloud layer) from the “multiple-layer situations” (more than one aerosol layer and/or more than one cloud layer). These latter situations are filtered in our analysis for the sake of simplicity (see Sects. 3.4 and 4).

## 3 Regional analysis and case studies

The results presented in this section were acquired from May to October 2008. We selected three distinctive regions (see Fig. 2) that are under the influence of various aerosol species and different types of clouds: (a) an area that extends from



**Figure 1.** The first row of the panel shows the lidar CALIOP attenuated backscatter coefficients at 532 nm ( $\text{km}^{-1} \text{sr}^{-1}$ ) and the second row presents the CALIOP attenuated backscatter coefficients at 1064 nm for three case studies: African biomass-burning aerosols (BBA) above clouds on 13 August 2006 (a–d), Saharan dust (DDA) on 4 August 2008 (e–h) and Siberian biomass-burning aerosols over the Okhotsk Sea on 3 July 2008 (i–l). For these cases, the above-cloud AOT at 532 nm and the Ångström exponent (AE) as a function of latitude, measured with several techniques, are displayed.

30° S to 5° N and 12° W to 14° E over the South Atlantic Ocean (SAO), (b) an area between 10 and 35° N and 10 and 40° W over the North Atlantic Ocean (NAO) and (c) an area located between 35 and 60° N and 140 and 170° E over the North Pacific Ocean (NPO). The south of the African continent is the main contributor to biomass-burning aerosols above clouds, originating from manmade crops fires (Waquet et al., 2013b). These aerosols are highly absorbing (SSA of approximately 0.84 at 865 nm) and associated with high AE values; they mainly contribute to the fine mode. The NAO area is mainly under the influence of dust aerosols originating from the Sahara for the time period of interest. These particles are mainly non-spherical and contribute primary to the coarse mode. They are moderately absorbing at the wavelength of CALIOP (532 nm) and almost non-absorbing at 865 nm (SSA of approximately 0.98) (Balkanski et al., 2007; Dubovik et al., 2002; Peers et al., 2015). The NPO is associated with various types of particles: fine-mode aerosols with

rather scattering properties originating from manmade pollution (Waquet et al., 2013a; Yu et al., 2008), biomass burning from forest fires (Peers et al., 2015; Zhang et al., 2003) and dust originated from the Asian deserts. Potential mixture of these different species is also possible for this area (Yu et al., 2006).

Cloud types and their associated optical and microphysical properties are expected to be different in these three regions (Warren et al., 1988). Low-level stratocumulus clouds typically cover the SAO, with some occurrences of cumulus and altostratus clouds. Cumulus, altostratus clouds and some stratocumulus clouds generally cover the NAO. The cloud cover is generally fractional over this part of the Atlantic Ocean. Stratocumulus clouds also frequently cover the NPO. Higher altostratus and cumulus clouds are also often observed over this area. Cirrus clouds can be frequently found at mid-latitudes and also in the intertropical convergence zone, which includes the NPO and the NAO regions.

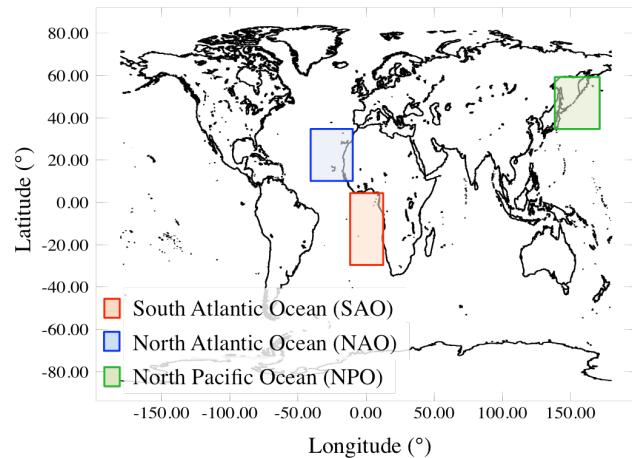
**Table 1.** Linear regressions of AOT calculated between different methods for three case studies: African biomass-burning aerosols (BBA), Saharan dust aerosols (DDA) and Siberian BBA.  $R^2$  represents the coefficient of determination (COD) between the two sets of data.

| Linear regressions              |             | African BBA<br>(13 Aug 2006) | Saharan DDA<br>(4 Aug 2008) | Siberian BBA<br>(3 Jul 2008) |
|---------------------------------|-------------|------------------------------|-----------------------------|------------------------------|
| DRM <sub>SODA</sub> vs. POLDER  | Slope       | 0.89 ± 0.01                  | 0.74 ± 0.04                 | 0.56 ± 0.01                  |
|                                 | Intercept   | 0.04 ± 0.01                  | 0.01 ± 0.02                 | 0.07 ± 0.009                 |
|                                 | $R^2$ (COD) | 0.93                         | 0.79                        | 0.90                         |
| DRM <sub>Hu</sub> vs. POLDER    | Slope       | 0.91 ± 0.01                  | 0.74 ± 0.03                 | 0.60 ± 0.01                  |
|                                 | Intercept   | 0.11 ± 0.01                  | 0.15 ± 0.02                 | 0.23 ± 0.009                 |
|                                 | $R^2$ (COD) | 0.93                         | 0.82                        | 0.89                         |
| CALIOP <sub>OM</sub> vs. POLDER | Slope       | 0.19 ± 0.01                  | 0.86 ± 0.11                 | 0.47 ± 0.08                  |
|                                 | Intercept   | 0.05 ± 0.01                  | -0.16 ± 0.07                | -0.04 ± 0.08                 |
|                                 | $R^2$ (COD) | 0.35                         | 0.41                        | 0.45                         |

We studied 6 months of data over each region to observe the consistency between different techniques for various types of aerosols. For this part of the study, we mixed the two-layer and multiple-layer situations and we analysed all the data, disregarding the position of the aerosol and cloud layers. A case study was selected for each region in order to show the spatial variability of the AOT at 532 nm retrieved along the CALIOP transect. The first case is related to a biomass-burning event detected off the coast of Namibia on 13 August 2006. The second event concerns Saharan dust lifted above clouds westwards over the NAO on 4 August 2008, and the third case concerns Siberian biomass-burning aerosols transported over the Okhotsk Sea on 3 July 2008.

Figure 1 presents the backscatter profile at 532 nm and at 1064 nm ( $\text{km}^{-1} \text{sr}^{-1}$ ) of the lidar CALIOP for the three case studies, which directly provides information on the aerosol and cloud vertical distribution. In addition, the AOT and AE values measured by different techniques are presented along the CALIOP track. Additional results for the study cases comparison are shown in Table 1.

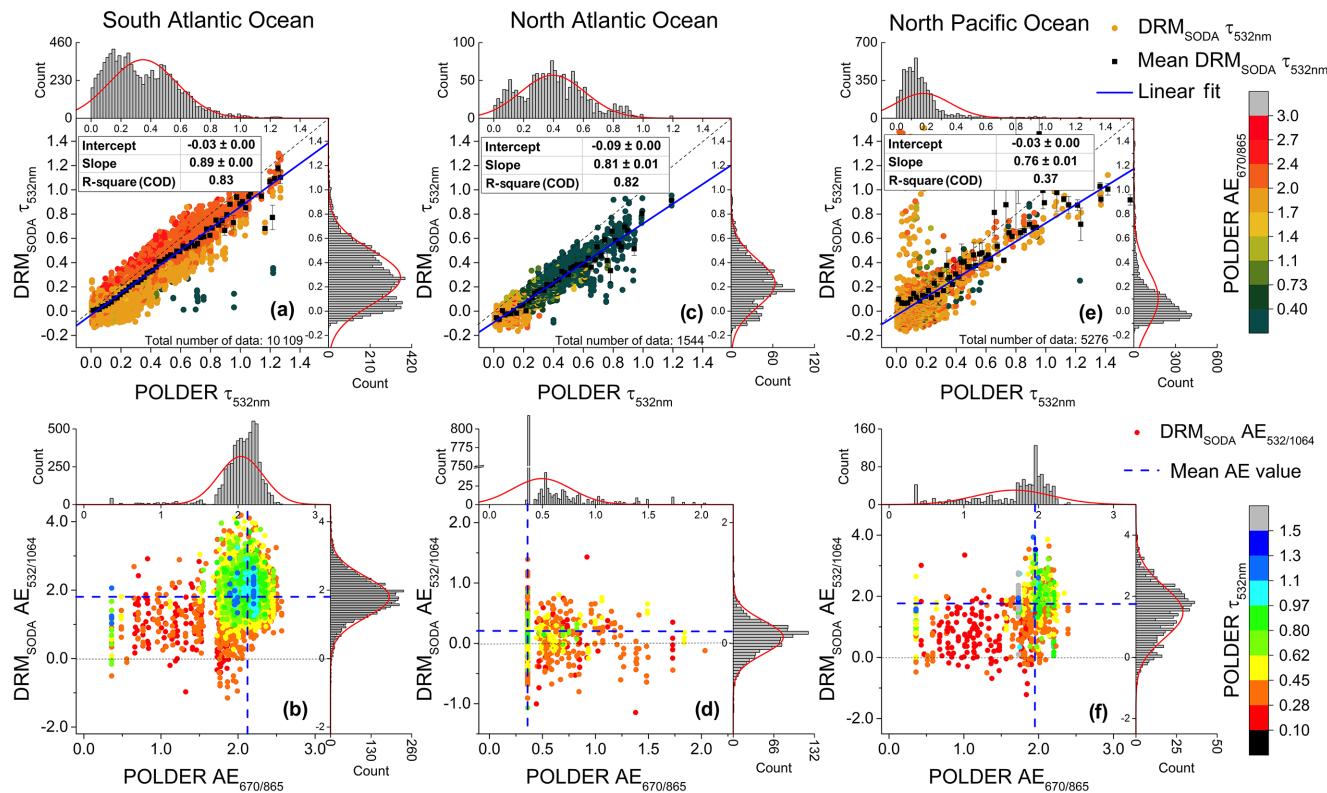
Figure 3 shows the regional comparison between the AOT and AE retrieved with POLDER and DRM<sub>SODA</sub> for a period of 6 months in 2008. The retrieval of aerosol type becomes difficult at small AOT. Therefore the AE comparison was performed only when the values of POLDER AOT at 865 nm and DRM<sub>SODA</sub> AOT at 532 nm were larger than 0.1. The AE mean value is shown with a dashed blue line. The lateral histograms show the data distribution. For the AOT comparison the colour scale represents the POLDER AE<sub>670/865</sub>. In the case of AE comparison, the POLDER AOT<sub>532 nm</sub> was also reported with a colour scale. The above-mentioned description is also considered in Fig. 4, which presents the regional comparison between the AOT and AE retrieved with POLDER and CALIOP<sub>OM</sub> for the same period. Additional results for the regional intercomparison are reported in Table 2.



**Figure 2.** The map presents the latitudinal and longitudinal boundaries of the three regions used in the regional study (Sect. 3): South Atlantic Ocean (SAO) extends from 30° S to 5° N and 12° W to 14° E, North Atlantic Ocean (NAO) is situated between 10 and 35° N and 10 and 40° W and North Pacific Ocean (NPO) is located between 35 and 60° N and 140 and 170° E.

### 3.1 African biomass-burning aerosols

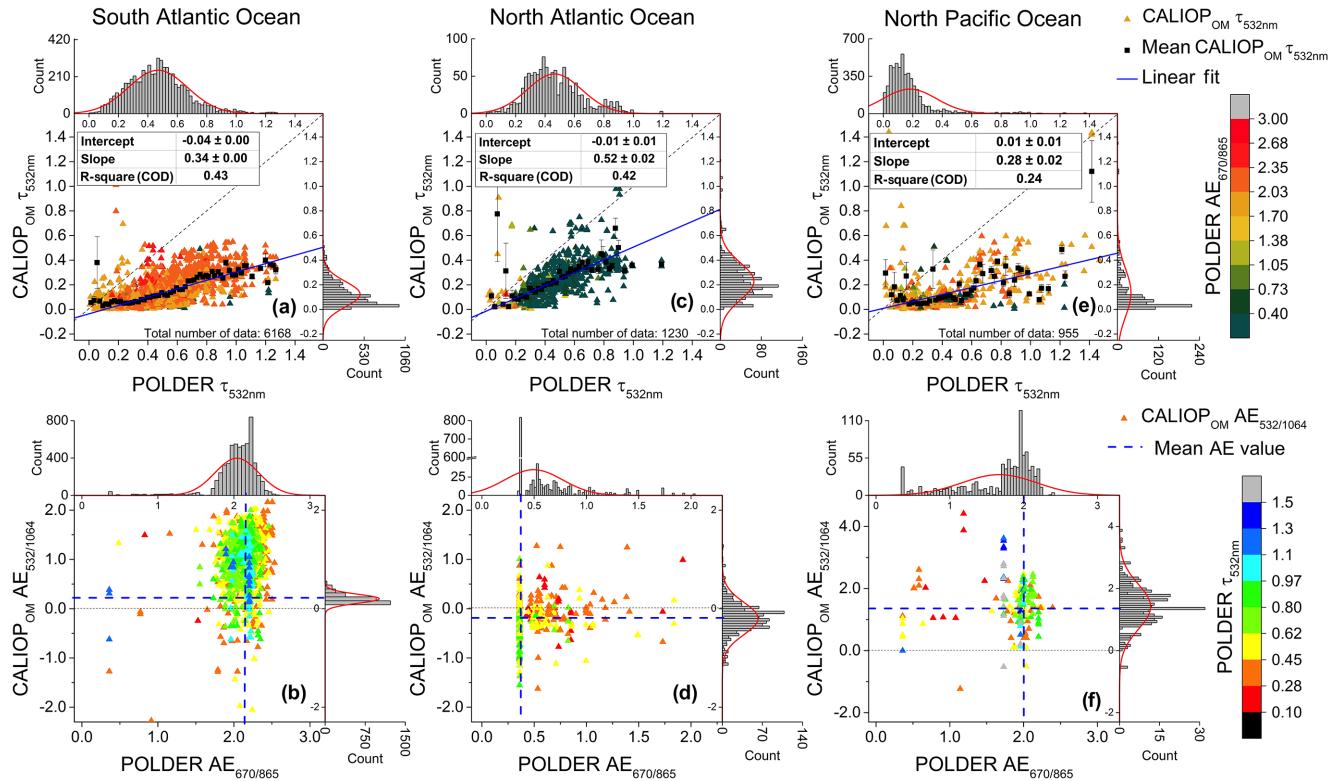
According to the CALIOP vertical profile at 532 nm of the biomass-burning case (Fig. 1a), the cloud top is at around 1.5 km and the aerosol layer is located between 3 and 5 km. The 1064 nm backscatter profile (Fig. 1b) exhibits an aerosol layer with a larger vertical extent, showing more potential contact area with the underlying cloud. We observe a thin cirrus cloud between 10 and 12° S that was not filtered, probably because the cirrus is optically too thin (Fig. 1c and d). In general, there is an excellent agreement between POLDER, DRM<sub>Hu</sub> and DRM<sub>SODA</sub> AOT retrievals with a square correlation  $R^2 = 0.93$  (see Table 1). High values of AOT are retrieved by the different methods, with AOT values as large as 1.5. The retrieved POLDER AE<sub>670/865</sub> is larger



**Figure 3.** The first row of the panel shows the comparison of AOT at 532 nm retrieved from DRM<sub>SODA</sub> and POLDER methods, with the corresponding POLDER AE colour scale, computed between 670 and 865 nm. The second row presents the Ångström exponent comparison for AOTs larger than 0.1, retrieved from DRM<sub>SODA</sub> and POLDER methods, with the corresponding POLDER AOT at 532 nm colour scale. The measurements were made over a period of 6 months (May to October 2008) and over three distinctive regions: South Atlantic Ocean, between 30° S and 5° N and 12° W and 14° E (**a, b**); North Atlantic Ocean, between 10 and 35° N and 10 and 40° W (**c, d**); and North Pacific Ocean, between 35 and 60° N and 140 and 170° E (**e, f**). The histograms present the data distribution. The error bars in (**a**), (**c**) and (**e**) represent the standard error of the mean (SEM).

**Table 2.** Linear regressions of AOT calculated between different methods for data acquired over 6 months (May to October 2008), over three different regions: South Atlantic Ocean (SAO), North Atlantic Ocean (NAO) and North Pacific Ocean (NPO).

| Linear regressions                           |                      | SAO           | NAO           | NPO           |
|--|----------------------|---------------|---------------|---------------|
| DRM <sub>SODA</sub> vs. POLDER               | Slope                | 0.89 ± 0.004  | 0.81 ± 0.009  | 0.76 ± 0.01   |
|  | Intercept            | -0.03 ± 0.001 | -0.09 ± 0.004 | -0.03 ± 0.003 |
|  | R <sup>2</sup> (COD) | 0.83          | 0.82          | 0.37          |
| DRM <sub>Hu</sub> vs. POLDER                 | Slope                | 0.90 ± 0.004  | 0.86 ± 0.01   | 0.76 ± 0.01   |
|  | Intercept            | 0.05 ± 0.001  | 0.04 ± 0.004  | 0.13 ± 0.003  |
|  | R <sup>2</sup> (COD) | 0.82          | 0.82          | 0.44          |
| CALIOP <sub>OM</sub> vs. POLDER              | Slope                | 0.34 ± 0.004  | 0.52 ± 0.02   | 0.28 ± 0.02   |
|  | Intercept            | -0.04 ± 0.002 | -0.01 ± 0.01  | 0.01 ± 0.01   |
|  | R <sup>2</sup> (COD) | 0.43          | 0.42          | 0.24          |
| CALIOP <sub>OM</sub> vs. DRM <sub>SODA</sub> | Slope                | 0.34 ± 0.002  | 0.62 ± 0.01   | 0.35 ± 0.01   |
|  | Intercept            | -0.01 ± 0.002 | 0.04 ± 0.006  | 0.01 ± 0.007  |
|  | R <sup>2</sup> (COD) | 0.42          | 0.48          | 0.28          |



**Figure 4.** Same as Fig. 3, retrieved from CALIOP operational method and POLDER method.

than 1.8 (Fig. 1d), which is characteristic of fine-mode particles (Dubovik et al., 2002). The DRMSODA AE<sub>532/1064</sub> is consistent with the POLDER AE, with values higher than 1.5. AOT values retrieved by CALIOP<sub>OM</sub> are much lower than the ones retrieved by the three other techniques. The maximal AOT retrieved by CALIOP<sub>OM</sub> at 532 nm is 0.5. A possible explanation for this potential low bias was proposed by Jethva et al. (2014): in case of optically thick aerosol layer, the sensitivity of the backscattered signal to the altitude of the base of the aerosol layer would be reduced or lost, being strongly attenuated by the two-way transmission term. As a result, the operational algorithm may overestimate the aerosol base altitude and so underestimate the geometrical thickness of the aerosol layer and consequently the AOT. The selection of an inappropriate aerosol model (i.e. aerosol lidar ratio  $S_a$  for biomass burning varies between  $70 \pm 28$  at 532 nm and  $40 \pm 24$  sr at 1064 nm; Cattrall et al., 2005; Omar et al., 2005) or the significant biases found in the V3.01 CALIOP 1064 nm calibration might also contribute to the underestimation of the AOT for this case study. The CALIOP<sub>OM</sub> mean AE<sub>532/1064</sub> seems quite low for fine-mode particles (AE values are lower than 1). The selection of an inappropriate aerosol model might also contribute to the underestimation of the AOT for this case study.

Regional analysis shows that South Atlantic region is mostly characterized by biomass-burning aerosols with large

AOT and AE (Fig. 3a and b). On average, the cloud top height is located below 1.5 km, while the aerosol layers are frequently located between 2.5 and 4 km (see Table 3). The AOT<sub>532 nm</sub> measured by DRMSODA and POLDER may reach values as large as 1.30 (Fig. 3a), with 80 % of the retrieved AOTs ranging between 0.05 and 0.8. This AOT intercomparison shows close correlation between DRMSODA and POLDER ( $R^2 = 0.83$ ). The mean value of POLDER AE<sub>670/865</sub> is 2.05, whereas the mean DRMSODA AE<sub>532/1064</sub> is 1.79 (Table 5) (both typical for BBA). DRM<sub>Hu</sub> and DRMSODA give rather same results. From the linear regressions performed (see Table 2) we can observe that the offset is always positive for DRM<sub>Hu</sub> and systematically larger than the absolute value for DRMSODA when compared to POLDER method. The AOT estimated by POLDER is constantly between DRM<sub>Hu</sub> and DRMSODA.

We do not find a good correlation between the CALIOP<sub>OM</sub> and POLDER AOT and AE retrievals. The CALIOP<sub>OM</sub> mean AOT<sub>532 nm</sub> is 0.12 and the mean AE<sub>532/1064</sub> is 0.97. Comparing with POLDER and DRMSODA, CALIOP<sub>OM</sub> is underestimating the ACAOT by a factor of 2.92.

### 3.2 Saharan dust aerosols

For the mineral dust case (Fig. 1e), the cloud top altitude is located at approximately 1 km altitude whereas the aerosol layer is located between 2 and 5 km for latitudes be-

tween 18 and 23° N. Figure 1g shows that the POLDER, DRM<sub>SODA</sub> and DRM<sub>Hu</sub> AOT<sub>532 nm</sub> increase up to 0.92, following the same gradient. The correlation coefficients between POLDER parameters and DRM<sub>Hu</sub> and DRM<sub>SODA</sub> parameters are close (Table 1). The majority of POLDER AE<sub>670/865</sub> and DRM<sub>SODA</sub> AE<sub>532/1064</sub> is associated with values lower than 0.4 (Fig. 1h), which indicates that coarse-mode particles are predominant (Dubovik et al., 2002). Except for few retrievals associated with an abrupt change in the AE and AOT measured by CALIOP<sub>OM</sub> (around 21° N in latitude), 90 % of the CALIOP<sub>OM</sub> AOT<sub>532 nm</sub> is lower than 0.45, being once again underestimated with respect to the other estimates. Most of CALIOP<sub>OM</sub> AE<sub>532/1064</sub> values are underestimated (i.e. overestimation of the particles size) in comparison with the AE retrieved by the two other algorithms. These low values of AOT and AE may be explained once more by a biased CALIOP calibration at 1064 nm combined with an unfitted model selection (i.e. for desert dust,  $S_a$  is equal to  $40 \pm 20$  sr at 532 nm and  $55 \pm 17$  sr at 1064 nm; Cattrall et al., 2005; Omar et al., 2005).

A regional study shows similar AOT and AE results over the North Atlantic region (Fig. 3c). On average, the aerosol layers are located between 3 and 4.5 km and the cloud top heights are typically around 1.4 km (see Table 3). The values of AOT<sub>532</sub> retrieved from POLDER and DRM<sub>SODA</sub> are well correlated ( $R^2 = 0.82$ ), with maximum values of, respectively, 1.19 and 0.95. Nonetheless, we observe a larger offset between DRM<sub>SODA</sub> and POLDER AOT<sub>532 nm</sub> for this region ( $-0.09$ ) compared to the South Atlantic Ocean region ( $-0.03$ ). The use of only one dust model in the LUT algorithm used for POLDER remains a limitation that might explain this larger offset. The introduction of additional dust models with larger or smaller effective radius values may contribute to improve the AOT retrievals for dust AAC events. Regarding the POLDER AE<sub>670/865</sub> retrievals, most of the values are lower than 0.4, which is expected for desert dust aerosols (Fig. 3c and d). However, for AOT values lower than 0.2, the AE<sub>670/865</sub> retrieved by POLDER is between 1.4 and 2.2. This is explained by the fact that the selection of the dust model is not permitted in the POLDER algorithm in case of low AOTs. Nonetheless, all three methods are consistent in revealing the predominance of the coarse mode. The mean values for the AE are 0.49 for POLDER, 0.10 for DRM<sub>SODA</sub> and  $-0.19$  for CALIOP<sub>OM</sub>. The AOT<sub>532 nm</sub> correlation between CALIOP<sub>OM</sub> and POLDER is low, with  $R^2 = 0.42$ .

### 3.3 East Asian mixture of aerosols

The CALIOP transect shows that Siberian biomass-burning case is located between 40 and 52° N, the cloud top altitude is constantly around 1 km and the base of the aerosol layer decreases from 10 km in the south (at 45° N) to around 2 km in the north (at 54° N) (Fig. 1i). We notice also cirrus clouds at high altitude (around 10 km) between 47 and 51° N, which were efficiently eliminated from the retrievals (Fig. 1k). The

**Table 3.** Regional analysis using CALIOP measurements over 6 months (May to October 2008), over South Atlantic Ocean (SAO), North Atlantic Ocean (NAO) and North Pacific Ocean (NPO): mean cloud altitude for altitudes smaller than 5 km, mean aerosol base and top altitudes for altitudes smaller than 10 km.

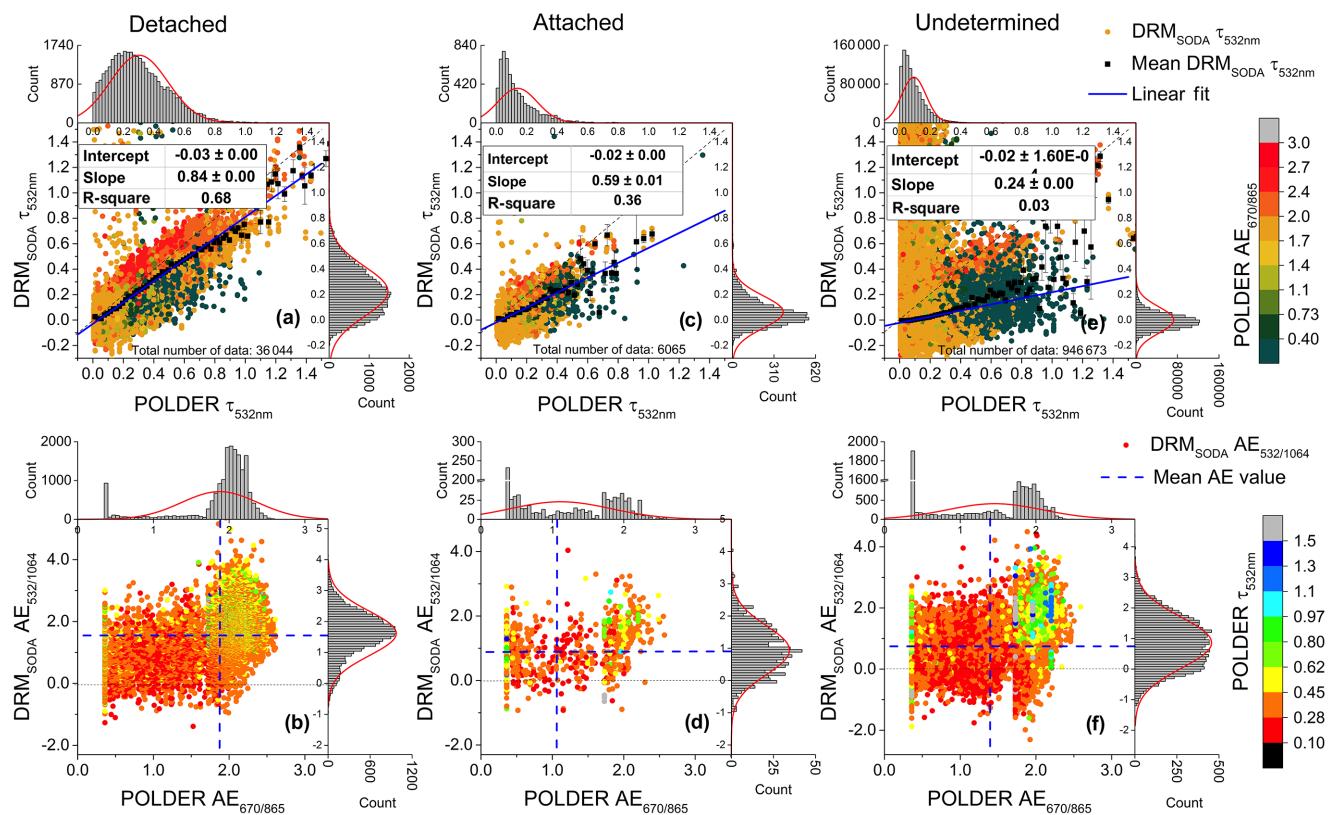
|                                 | SAO  | NAO                                       | NPO                                       |
|---------------------------------|--|---|---|
| Mean cloud top altitude (km)    | $1.24 \pm 0.43$<br>Min: 0.30<br>Max: 4.95  | $1.35 \pm 0.5$<br>Min: 0.20<br>Max: 3.25  | $1.09 \pm 0.84$<br>Min: 0.05<br>Max: 5.0  |
| Mean aerosol top altitude (km)  | $3.83 \pm 0.093$<br>Min: 0.50<br>Max: 6.73 | $4.50 \pm 1.03$<br>Min: 0.44<br>Max: 6.67 | $2.74 \pm 1.68$<br>Min: 0.47<br>Max: 9.85 |
| Mean aerosol base altitude (km) | $2.90 \pm 0.97$<br>Min: 0.02<br>Max: 5.80  | $2.97 \pm 1.12$<br>Min: 0.02<br>Max: 5.74 | $3.48 \pm 1.78$<br>Min: 0.05<br>Max: 9.31 |

**Table 4.** Calculated mean, minimum value and maximum value of AOT<sub>532 nm</sub> over 6 months in 2008, for three regions (SAO, NAO, NPO) and for different methods.

| AOT <sub>532 nm</sub> |      | SAO             | NAO             | NPO             |
|-----------------------|------|-----------------|-----------------|-----------------|
| POLDER                | Mean | $0.35 \pm 0.23$ | $0.39 \pm 0.21$ | $0.18 \pm 0.21$ |
|                       | Min  | 0.005           | 0.005           | 0.005           |
|                       | Max  | 1.27            | 1.19            | 2.17            |
| DRM <sub>SODA</sub>   | Mean | $0.28 \pm 0.22$ | $0.23 \pm 0.19$ | $0.15 \pm 0.38$ |
|                       | Min  | -0.13           | -0.16           | -0.16           |
|                       | Max  | 1.30            | 0.95            | 3.26            |
| DRM <sub>Hu</sub>     | Mean | $0.37 \pm 0.23$ | $0.38 \pm 0.20$ | $0.32 \pm 0.40$ |
|                       | Min  | -0.07           | -0.06           | -0.06           |
|                       | Max  | 1.50            | 1.17            | 3.68            |
| CALIOP <sub>OM</sub>  | Mean | $0.12 \pm 0.11$ | $0.23 \pm 0.18$ | $0.14 \pm 0.23$ |
|                       | Min  | 0.001           | 0.005           | 0.001           |
|                       | Max  | 1.88            | 2.38            | 2.01            |

maximum POLDER AOT value is as large as 1.9, while DRM reaches 1.3 in AOT. Nonetheless, Table 1 shows that POLDER and DRM methods AOT<sub>532 nm</sub> retrievals are consistent ( $R^2 = 0.90$ ). POLDER AE<sub>670/865</sub> values are between 1.7 and 2.3, indicating small particles of smoke, while DRM<sub>SODA</sub> AE<sub>532/1064</sub> has a large range of values (Fig. 1l). The number of sampled ACAOT events by CALIOP<sub>OM</sub> is 4.5 times less than of POLDER and DRM<sub>SODA</sub>. For these, the CALIOP<sub>OM</sub> AOTs are underestimated by a factor of 1.5 compared to ones retrieved by the other methods. Also, the correlation coefficient with POLDER is 0.45.

On a regional scale, this area is under the influence of various aerosols (BBA, DDA, pollution) and elevated cirrus clouds are frequent. The mean cloud top altitude is around 1 km and the aerosols are between 2.5 km and 4.0 km. As indicated in Table 3, the maximum aerosol altitude is 9.85 km, which might suggests cirrus misclassification. In some cases,



**Figure 5.** Global comparison over a period of 4.5 years (June 2006–December 2010) for situations with aerosol layer well separated from the cloud top (“detached”; **a**, **b**), for cases where the aerosol layer is in contact with the cloud (“attached”; **c**, **d**) and for “undetermined” situations (**e**, **f**). The comparison of AOT at 532 nm retrieved from  $\text{DRM}_{\text{SODA}}$  and POLDER methods is shown in the first row. The colour scale represents the corresponding POLDER AE computed between 670 and 865 nm. The second row presents the Ångström exponent for AOTs larger than 0.1, with a POLDER AOT at 532 nm colour scale. The histograms present the data distribution. The error bars in (**a**), (**c**) and (**e**) represent the standard error of the mean (SEM).

$\text{DRM}_{\text{SODA}}$  gives large values of  $\text{AOT}_{532\text{nm}}$  (larger than 1) whereas the POLDER estimates  $\text{AOT}_{532\text{nm}}$  smaller than 0.2. These situations could be explained by a misinterpretation of thin cirrus clouds as aerosols. Otherwise, the POLDER mean  $\text{AOT}_{532\text{nm}}$  and  $\text{DRM}_{\text{SODA}}$   $\text{AOT}_{532\text{nm}}$  are in rather close agreement (0.18 and 0.15, respectively; see Table 4), but the correlation between them is low ( $R^2 = 0.37$ , Table 2). All methods show a large variability for the retrieved AE, with values that correspond to particle size distributions dominated by coarse or fine modes and mixtures (Table 5). As previously mentioned, the algorithm developed for POLDER uses a bimodal aerosol model for dust. However, the possibility of mixing different fine and coarse aerosol models in various proportions is not yet included. This might explain why we found a lower correlation between the POLDER and DRM retrievals for this region. As for above, the CALIOPOM and POLDER  $\text{AOT}_{532\text{nm}}$  are not correlated ( $R^2 = 0.24$ ).

In general, there is a good agreement between POLDER and  $\text{DRM}_{\text{SODA}}$  AOTs, especially when the fine mode or coarse mode dominates the particle size distribution (i.e. BBA and DDA). Overall,  $\text{DRM}_{\text{SODA}}$  and  $\text{DRM}_{\text{Hu}}$  give sim-

ilar results. However, the AOTs retrieved with  $\text{DRM}_{\text{Hu}}$  are generally larger than those of  $\text{DRM}_{\text{SODA}}$  for all the three regions (i.e. 0.37 compared to 0.28 for SAO; see Table 4). While  $\text{DRM}_{\text{SODA}}$  has a constant negative offset when compared to POLDER,  $\text{DRM}_{\text{Hu}}$  rarely retrieves null AOT values (offsets always larger than 0; see Table 2). This is likely to be a consequence of the calibration performed for the  $\text{DRM}_{\text{SODA}}$  method. Also, there is no obvious correlation between the CALIOPOM and POLDER  $\text{AOT}_{532\text{nm}}$  retrievals for all regions.

Finally, in addition to the 6-month regional study, we also examined the impact of the vertical aerosol–cloud profiles over the three regions using data acquired from May to October between 2006 and 2010. We systematically found higher correlation coefficients between the  $\text{DRM}_{\text{SODA}}$  and POLDER AOTs when the layers were well separated than when they were in contact (see Table 6). These results have led us to consider the vertical distribution of aerosols and clouds in the global comparison.

**Table 5.** Mean value of AE over 6 months in 2008 for three regions (SAO, NAO, NPO) for different methods after filtering the POLDER AOT<sub>865 nm</sub> > 0.1 and DRM<sub>SODA</sub> AOT<sub>532 nm</sub> > 0.1 and the CALIOPOM AOT<sub>532 nm</sub> > 0.1.

|                     |                             | SAO         | NAO          | NPO         |
|---------------------|-----------------------------|-------------|--------------|-------------|
| POLDER              | Mean AE <sub>670/865</sub>  | 2.05 ± 0.27 | 0.49 ± 0.27  | 1.67 ± 0.50 |
|                     | Min                         | 0.36        | 0.36         | 0.36        |
|                     | Max                         | 2.56        | 2.03         | 2.39        |
| DRM <sub>SODA</sub> | Mean AE <sub>532/1064</sub> | 1.79 ± 0.58 | 0.10 ± 0.27  | 1.47 ± 0.84 |
|                     | Min                         | -1.15       | -1.14        | -1.21       |
|                     | Max                         | 4.19        | 1.43         | 3.93        |
| CALIOPOM            | Mean AE <sub>532/1064</sub> | 0.97 ± 0.51 | -0.19 ± 0.32 | 0.41 ± 0.72 |
|                     | Min                         | -2.27       | -1.62        | -2.63       |
|                     | Max                         | 3.16        | 1.27         | 4.41        |

**Table 6.** Linear regression calculated between DRM<sub>SODA</sub> AOT<sub>532 nm</sub> and POLDER AOT<sub>532 nm</sub> for situations when the aerosol layer is attached to the cloud top and when the aerosol layer is well separated from the cloud over three regions (South Atlantic Ocean, North Atlantic Ocean and North Pacific Ocean) and for a period of 4.5 years.

|                      | SAO          |              | NAO           |                | NPO          |                |
|----------------------|--------------|--------------|---------------|----------------|--------------|----------------|
|                      | Attached     | Detached     | Attached      | Detached       | Attached     | Detached       |
| Slope                | 0.60 ± 0.02  | 0.77 ± 0.003 | 0.63 ± 0.07   | 0.59 ± 0.01    | 0.78 ± 0.12  | 0.80 ± 0.02    |
| Intercept            | 0.04 ± 0.006 | 0.02 ± 0.001 | -0.005 ± 0.02 | -0.011 ± 0.006 | -0.04 ± 0.02 | -0.015 ± 0.007 |
| R <sup>2</sup> (COD) | 0.54         | 0.715        | 0.39          | 0.57           | 0.19         | 0.435          |

## 4 Global analysis on different types of scenes

### 4.1 Detached, attached, undetermined

Figure 5a shows the global comparison between the AOT<sub>532 nm</sub> and AE retrieved with POLDER and DRM<sub>SODA</sub> for the detached cases. The AE comparison was only performed when the POLDER AOT at 865 nm and DRM<sub>SODA</sub> AOT at 532 nm are larger than 0.1. The colour scales used in Fig. 5 represent either the POLDER AE<sub>670/865</sub> for the AOT comparison (Fig. 5a) or the POLDER AOT<sub>532 nm</sub> for the AE comparison (Fig. 5d). Considering the large amount of selected data (85.6 % of the two-layer cases) in terms of both spatial and temporal coverage, the comparison shows a good correlation between the two methods ( $R^2 = 0.68$ ). A better agreement between the methods is found when the values of DRM<sub>SODA</sub> and POLDER AE are larger than 1.8. This is likely due to the fact that the POLDER method is more sensitive to fine-mode aerosols, due to polarization measurements, and also because an improved description of the fine-mode properties was included in the LUT (i.e. six fine-mode aerosol models are used).

Events for which the aerosol layer is attached to the cloud top represent 14.4 % of the total number of two-layer cases. They are associated with lower AOT and the correlation between the two retrievals largely decreases (compared to the detached events). The correlation between the two AOT retrievals also decreases ( $R^2 = 0.36$ , Fig. 5c). The POLDER

AOT is larger by a coefficient of 1.7 than the DRM<sub>SODA</sub> AOT on average. The AE given by both methods is approximately 1.0 (when considering only AE values associated with AOT > 0.1). The lateral histogram shows that the POLDER method identifies AAC events associated with both low and high AE values, resulting in a mean AE of about 1.0.

The undetermined situations correspond to retrievals when CALIOP does not give all the information regarding the layer altitudes. The number of cases is significant (approximately 92 % of the total number of global retrievals) but most of data (95 %) correspond to AOT<sub>532 nm</sub> lower than 0.2. This probably explains why the layer detection algorithm has difficulties in estimating the base and top of the aerosol layer. For the undetermined cases, we observe that there is not much correlation between POLDER and DRM<sub>SODA</sub> measurements. On average, the DRM<sub>SODA</sub> AOTs are centred around zero for this category whereas POLDER has a non-negligibly low AOT for most cases. In this category, the AE comparison shows a better consistency between the methods for AOT<sub>532 nm</sub> > 0.5 and for AE of approximately 2.0.

Table 7 shows the results of the linear regressions performed between the AOTs retrieved with POLDER and the other active methods considered in our study for each category (i.e. detached, attached and undetermined). We recapture the systematically larger offsets of DRM<sub>Hu</sub> AOT<sub>532 nm</sub> compared to DRM<sub>SODA</sub> and the underestimation of CALIOPOM AOT with respect to the other methods.

**Table 7.** Linear regressions calculated between different methods for data acquired over June 2006 to December 2010, on a global scale above the ocean in the case of aerosol attached to the cloud top, detached from the cloud and undetermined situations for AOT smaller than 1.5.

| Linear regressions                           |                      | Detached      | Attached      | Undetermined |
|--|----------------------|---------------|---------------|--------------|
| DRM <sub>SODA</sub> vs. POLDER               | Slope                | 0.84 ± 0.003  | 0.59 ± 0.01   | 0.24 ± 0.001 |
|  | Intercept            | -0.03 ± 0.001 | -0.02 ± 0.002 | -0.02        |
|  | R <sup>2</sup> (COD) | 0.68          | 0.36          | 0.03         |
| DRM <sub>Hu</sub> vs. POLDER                 | Slope                | 0.78 ± 0.002  | 0.55 ± 0.001  | 0.28 ± 0.001 |
|  | Intercept            | 0.10 ± 0.001  | 0.12 ± 0.002  | 0.09         |
|  | R <sup>2</sup> (COD) | 0.68          | 0.36          | 0.05         |
| CALIOP <sub>OM</sub> vs. POLDER              | Slope                | 0.17 ± 0.002  | 0.12 ± 0.007  | 0.06 ± 0.008 |
|  | Intercept            | 0.013         | 0.02 ± 0.001  | 0.14 ± 0.002 |
|  | R <sup>2</sup> (COD) | 0.15          | 0.047         | 0.003        |
| CALIOP <sub>OM</sub> vs. DRM <sub>SODA</sub> | Slope                | 0.17 ± 0.002  | 0.1 ± 0.007   | 0.21 ± 0.01  |
|  | Intercept            | 0.029         | 0.04 ± 0.001  | 0.14 ± 0.001 |
|  | R <sup>2</sup> (COD) | 0.15          | 0.03          | 0.01         |

## 4.2 Evolution of the above-cloud AOT retrievals with cloud properties

In principle, the retrieval of AAC properties from the methods considered in this study should not depend on the properties of the underlying clouds. However, hypotheses and empirical relations used in the retrieval methods to exploit the signal backscattered by the underlying cloud cover obviously have their limitations. In order to understand potential issues linked with diversity of cloud properties, we analyse in this section the difference between the AOT retrievals of POLDER, DRM<sub>SODA</sub> and DRM<sub>Hu</sub> by classes of cloud properties (COT and  $r_{\text{eff}}$  retrieved with MODIS). We considered global measurements acquired for 4.5 years of data and used the classification defined in Sect. 2.3.2.

Figure 6 presents POLDER and DRM<sub>SODA</sub> AOT<sub>532</sub> retrievals as a function of the MODIS droplets effective radius ( $r_{\text{eff}}$ ), while Fig. 8 displays POLDER and DRM<sub>SODA</sub> AOT<sub>532 nm</sub> as a function of the MODIS COT. Histograms of the cloud properties are also reported in Figs. 6, 7 and 8. The results of the POLDER and DRM<sub>Hu</sub> AOT<sub>532</sub> comparison as a function of the effective radius are shown in Fig. 7. DRM<sub>SODA</sub> and DRM<sub>Hu</sub> AOT<sub>532 nm</sub> generally exhibit rather similar behaviour, at least qualitatively. Therefore, we did not report the results found for the DRM<sub>Hu</sub> AOT<sub>532</sub> as a function of MODIS COT.

### 4.2.1 AOT vs. $r_{\text{eff}}$

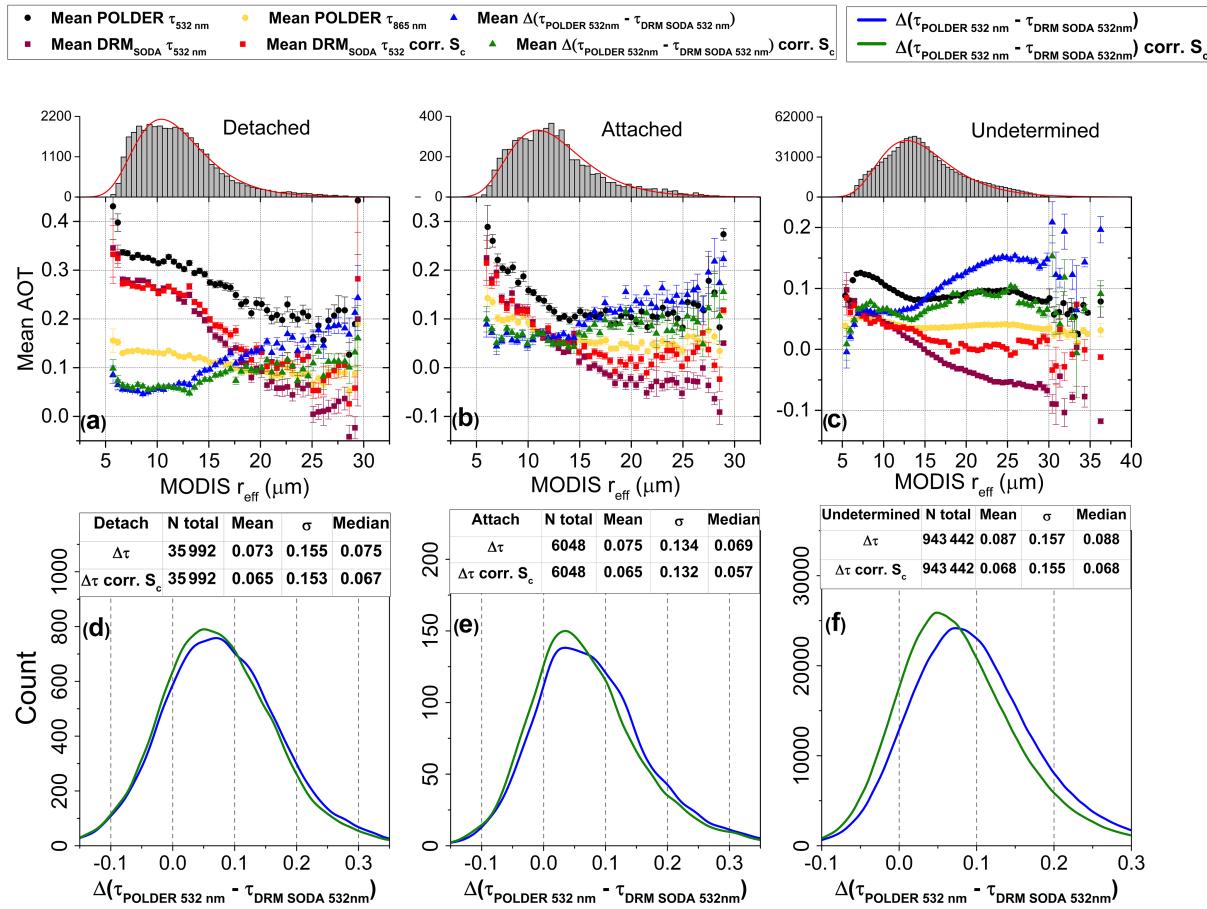
The lateral histograms plotted in Figs. 6 and 8 show that most of the AAC scenes correspond to cloud droplets effective radius values between 8 and 15  $\mu\text{m}$  (mean  $r_{\text{eff}}$  equal to 12  $\mu\text{m}$ ) and COT ranging from 5 to 15 (mean COT of 10). These mean values are expected since most of the AAC events are generally associated with low-level non-

precipitating clouds, such as stratocumulus ones, which typically show rather small droplets (approximately 10  $\mu\text{m}$ ) and optical thickness values of approximately 10.

Figure 6a shows the POLDER and DRM<sub>SODA</sub> AOTs for the detached situations. For the two methods, the retrieved AOTs are maximal for the smallest values of  $r_{\text{eff}}$  and progressively decrease with  $r_{\text{eff}}$ . Same tendencies are observed for the DRM<sub>Hu</sub> (see Fig. 7a). The two curves have an offset, however. The histogram of the differences between POLDER and DRM<sub>SODA</sub> AOT ( $\Delta\tau$ ) is presented in Fig. 6d. The mean  $\Delta\tau$  value computed over the entire range of  $r_{\text{eff}}$  is equal to 0.073. This offset is not constant and slightly increases with  $r_{\text{eff}}$ , suggesting a sensitivity of one of the two methods to the cloud droplets effective radius. The DRM algorithm does not use an explicit parameterization of the lidar ratio as a function of the cloud droplets effective radius. An implicit dependence will arise from the latitudinal correction (Eq. 9) when clouds at different latitudes exhibit different microphysical properties. In order to understand the usefulness of adding an explicit parameterization, we recalculated the DRM<sub>SODA</sub> AOT<sub>532 nm</sub>, taking into account the dependence of  $S_c$  on  $r_{\text{eff}}$ . This calculation assumes a simplified and unique droplet size distribution and is based on MODIS  $r_{\text{eff}}$  retrieval. We expect that even if the cloud droplet size distribution is variable (Miles et al., 2000) and the ACAOT creates a bias in  $r_{\text{eff}}$ , the results will still provide guidance for future algorithm development. As defined in Josset et al. (2011),  $S_c$  was computed using a Mie code with the following equation:

$$S_c = \frac{4\pi}{\omega_0 \times p(180^\circ)}, \quad (11)$$

where  $p(180^\circ)$  is the average value of the phase function in the backscatter direction computed over the size distribution.  $\omega_0$  is the SSA of the particles, defined as the ratio



**Figure 6.** Four and a half years of global study on the evolution of POLDER and DRM<sub>SODA</sub> above-cloud AOT retrievals as a function of MODIS effective radius ( $r_{\text{eff}}$ ,  $\mu\text{m}$ ) for situations where the aerosol layer is detached from the cloud top (a, d), for cases where the aerosol layer is attached to the cloud top (b, e) and for undetermined situations (c, f). The histograms in (a)–(c) represent the distribution of  $r_{\text{eff}}$ . The histograms in (d)–(f) present the difference between POLDER and DRM<sub>SODA</sub> mean AOTs, before the correction of DRM<sub>SODA</sub> AOT with  $r_{\text{eff}}$  ( $\Delta\tau$ ) and after this correction ( $\Delta\tau \text{ corr. } S_c$ ). The associated tables indicate the number of cases, mean, standard deviation ( $\sigma$ ) and median values of these differences. The error bars in (a)–(c) represent the standard error of the mean (SEM).

between the mean scattering coefficient and the mean extinction coefficient computed over the particle size distribution. We used a two-parameter gamma size distribution with an effective variance of 0.088. The real refractive index was set to 1.337. Liquid water droplets do not significantly absorb at 532 nm and the imaginary part of the complex refractive index was set to 0. As shown in Fig. 9,  $S_c$  slightly decreases with  $r_{\text{eff}}$  from 19.5 to 15.5 as the effective radius values increases from 5 to 40  $\mu\text{m}$ . With this correction, the mean difference between POLDER and the DRM<sub>SODA</sub> AOT<sub>532 nm</sub> ( $\Delta\tau_{\text{corr}S_c}$  in Fig. 6d) decreases from 0.073 to 0.065. We found equivalent results for the attached and undetermined cases (Fig. 6b and c). After correction of  $S_c$ , the difference between POLDER and DRM<sub>SODA</sub> decreases on average by 0.01 for the attached cases and by 0.019 for the undetermined cases. We also observe that most of the negative AOT values retrieved by the DRM<sub>SODA</sub> shift either to null values or weakly positive values when this correction is included

(Fig. 6a–c). We are aware that MODIS effective radius may be affected by the presence of aerosols above clouds. For example, Haywood et al. (2004) found biases of  $\pm 2 \mu\text{m}$  for  $r_{\text{eff}}$  in case of strong dust events above clouds and Meyer et al. (2015) found an increase in the  $r_{\text{eff}}$  monthly mean of 2 % in case of above-cloud absorbing aerosols. We expect that large biases on  $r_{\text{eff}}$  could be possible in case of high aerosol loading for detached cases. However, we consider that the impact of the biases on the retrieved  $r_{\text{eff}}$  on our findings and conclusions can be neglected, since the analysis hold for (i) a wide range of droplets effective radius (from 5 to 40  $\mu\text{m}$ ) and (ii) AAC events associated with low aerosol loadings (see the results for the undetermined cases), where the impacts of the aerosols on the cloud retrievals are expected to be minimized or negligible.

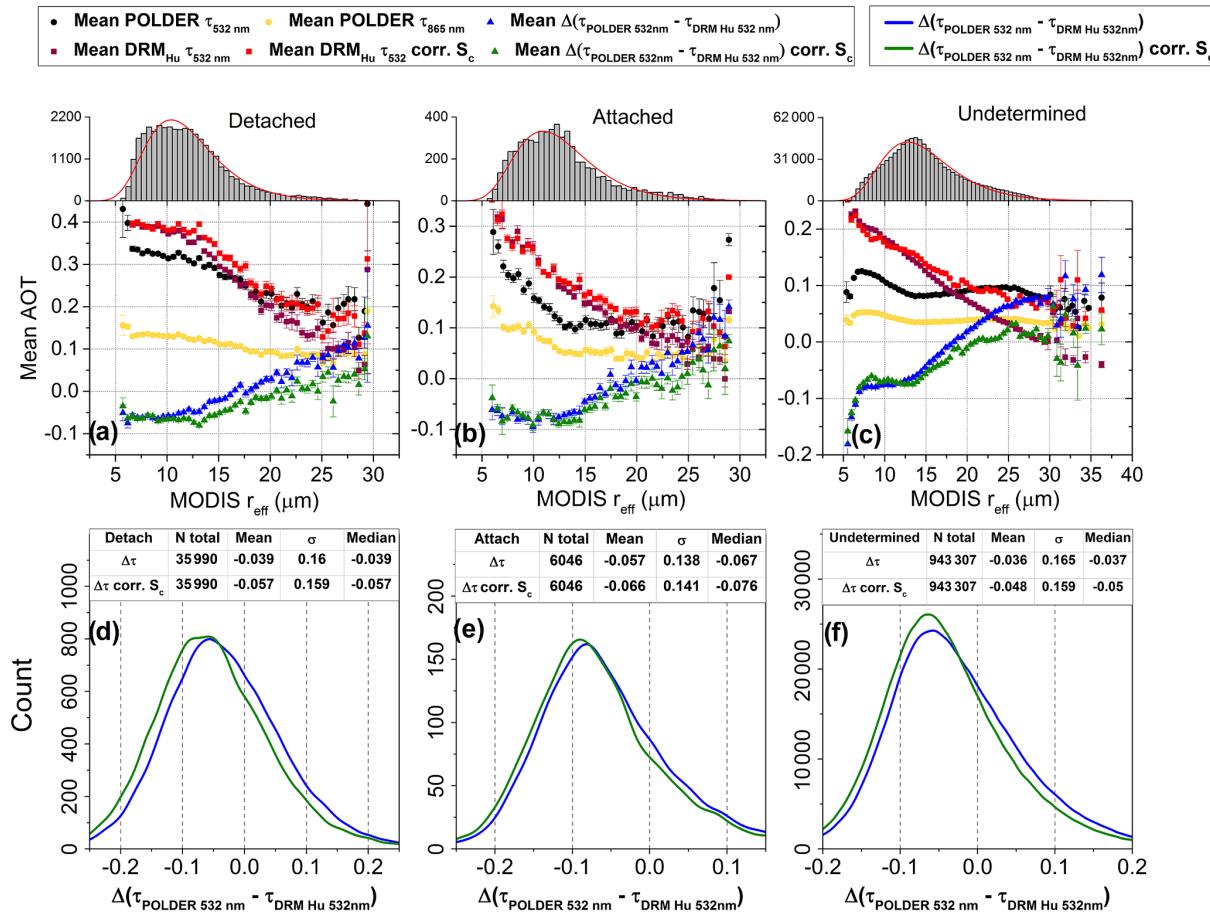
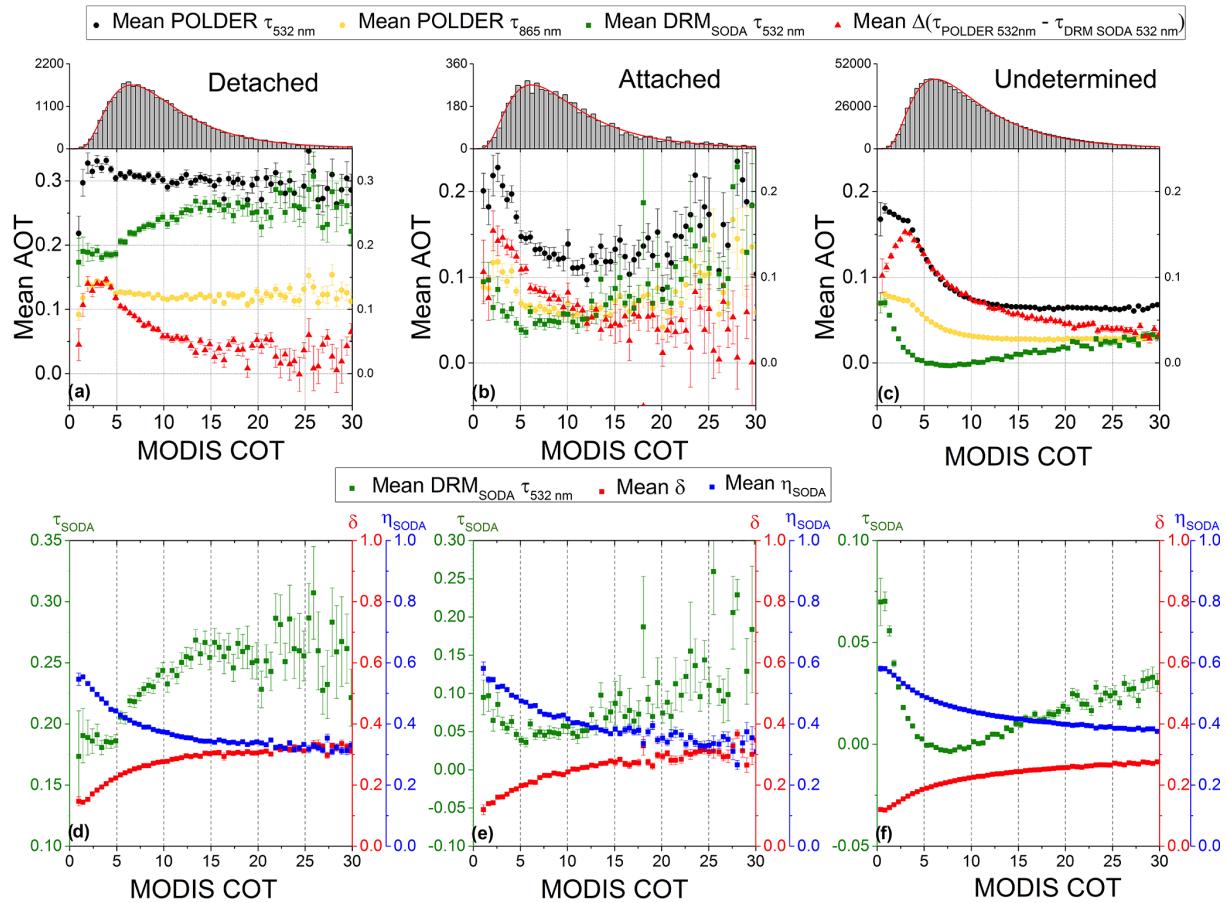


Figure 7. Same as Fig. 6: POLDER and DRM<sub>Hu</sub> above-cloud AOT retrievals as a function of MODIS effective radius ( $r_{\text{eff}}$ ,  $\mu\text{m}$ ).

#### 4.2.2 AOT vs. COT

The two methods were developed to detect AAC events in the case of optically thick and homogeneous liquid water clouds. In the following, we only discuss results obtained for large values of COT (larger than 5). If the clouds are optically thinner, the two methods are potentially less accurate since they become sensitive to the surface contribution. Hu et al. (2007a) noticed the surface impact on DRM<sub>Hu</sub> when the underlying cloud is not entirely opaque; therefore the assumptions used in the DRM<sub>Hu</sub> AOT retrievals are not met. For COTs ranging between 5 and 30 and for detached cases, the POLDER AOTs are almost constant and reach 0.3 on average at 532 nm (see Fig. 8a). Most of the associated COT values then range between 5 and 10. For these cases, DRM<sub>SODA</sub> and POLDER AOTs are offset by around 0.07 on average, as noted above. However, the DRM<sub>SODA</sub> AOT progressively increases with the COT, which is not observed for the POLDER AOT. Consequently, the differences in AOT between the two methods become almost negligible for the largest (and less frequent) values of COT (larger than 20). For COTs larger than 3, the polarized signal reflected by the

cloud is saturated and the POLDER method should be insensitive to COT. DRM<sub>SODA</sub> is sensitive to the multiple scattering processes occurring within the cloud layers and might be impacted by the COT since multiple scattering increases with the optical thickness. The measured depolarization ( $\delta'$ ) and the multiple scattering factor ( $\eta_{\text{calibr}}$ ) plotted as a function of the COT are shown in Fig. 8d. As expected, the depolarization and the multiple scattering factor respectively increase and decrease as COT increases. The increase in the DRM<sub>SODA</sub> AOT observed at large COTs might be due to an increase in the multiple scattering. We recall that DRM<sub>SODA</sub> uses a relationship to connect the depolarization and the multiple scattering factor and that this relation is calibrated based on CALIOP data. The calibration might be less accurate in the case of AAC events associated with clouds for which the properties are statistically less representative. Again, we presume that our conclusions are not impacted by the fact that the MODIS COTs can be potentially biased in case of AAC events since the tendencies we observed hold for a large range of variability in COT (5 to 30) and also for AAC events associated with low AOT above clouds (see the results for the undetermined cases).



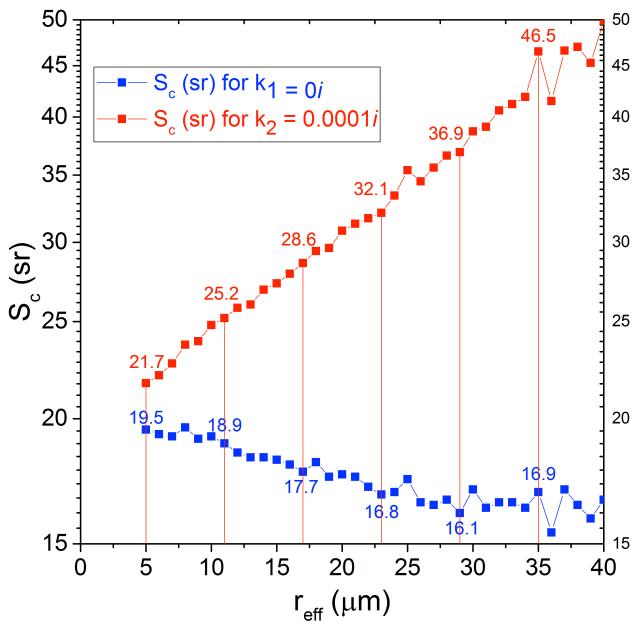
**Figure 8.** Four and a half years of global study of the evolution of POLDER and DRM<sub>SODA</sub> above-cloud AOT retrievals, as well as the difference of these two methods as a function of MODIS cloud optical thickness (COT), for situations where the aerosol layer is detached from the cloud top (**a**), for cases where the aerosol layer is attached to the cloud top (**b**) and for undetermined situations (**c**). The histograms represent the distribution of COT. The error bars show the standard error of the mean (SEM). Panels (**d**)–(**f**) display the evolution of DRM<sub>SODA</sub> AOT ( $\tau_{\text{SODA}}$ ), depolarization ratio ( $\delta$ ) and multiple scattering factor ( $\eta_{\text{SODA}}$ ) as a function of MODIS COT, for the abovementioned situations.

## 5 Discussion

In the first part of this section, we quantify and discuss the overall differences found between the active and passive methods in terms of the retrieved AOT. In the second part, we address more specifically the attached cases and make hypotheses regarding the meaning of these results.

On average, the difference between POLDER and DRM<sub>SODA</sub> AOTs at 532 nm is equal to 0.073 for the detached cases and 0.087 for the undetermined cases. These differences slightly decrease to 0.065 and 0.068, respectively, when we account for the dependency of the cloud droplets lidar ratio ( $S_c$ ) to  $r_{\text{eff}}$  in Eq. (10). The POLDER AOTs are systematically smaller than the ones retrieved with DRM<sub>Hu</sub>. On average, these differences between these two methods are equal to  $-0.039$  and  $-0.057$ , for the detached cases, and reach  $-0.036$  and  $-0.048$  for the undetermined cases, respectively without and with corrections for  $S_c$ . Thereby, the POLDER AOT estimates range, on average, between the

DRM<sub>Hu</sub> and DRM<sub>SODA</sub> ones. The differences in AOTs found between the POLDER method and the two DRM ones could be set to zero by modifying the lidar calibration by roughly  $\pm 10\%$ . One another main difference between the three methods is their different responses in terms of AOT when the atmosphere above the clouds becomes pristine. The majority of AOT (94 %) is lower than 0.1 at 865 nm for the undetermined cases. For these cases, the POLDER algorithm retrieves a mean AOT of about 0.04 at 865 nm. The accuracy of the POLDER AOT product is on the same order of magnitude. For an AOT<sub>865 nm</sub> of 0.2, the error for a real refractive index uncertainty of  $\pm 0.06$  would be about 0.05; for an imaginary refractive index uncertainty of  $\pm 0.01$ , the error would be of 0.02 (Peers et al., 2015). The impact of the assumed refractive index is lower at smaller AOT (especially for an AOT of 0.04). The background of the extrapolated POLDER AOT at 532 nm for the undetermined cases reaches 0.09. This latter value is only reported for the sake of comparison with the two other methods since the Ångström ex-



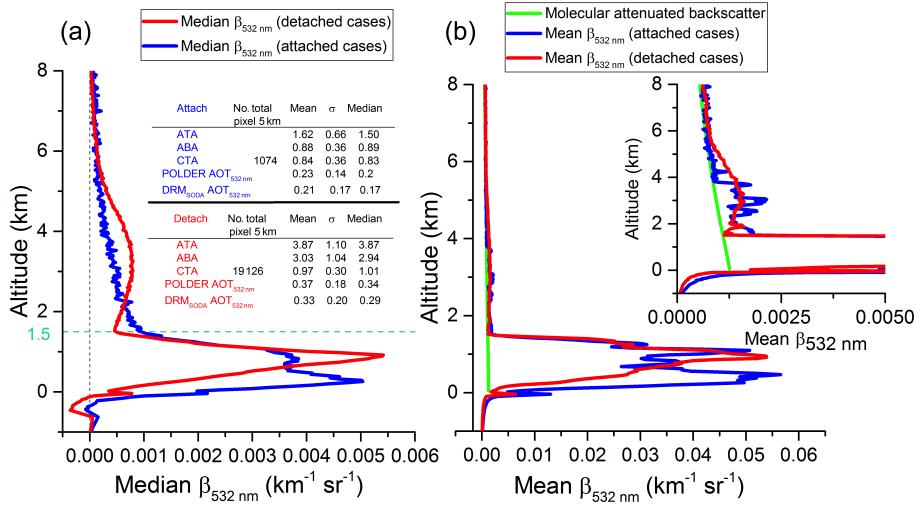
**Figure 9.** Sensitivity study of lidar ratio ( $S_c$ , sr) as a function of the cloud droplets effective radius, using a two-parameter gamma size distribution in Mie code. The effective variance,  $v_{\text{eff}}$ , is set to 0.088. The real part of the refractive index is fixed to 1.337, while the imaginary part,  $k$ , was set to 0 (blue) and to  $0.0001i$  (red).

ponent retrieved by POLDER (and consequently the AOT extrapolated at 532 nm) cannot be accurately retrieved for low AOTs. DRMSODA found a mean AOT of about 0.005 at 532 nm for the undetermined cases (see Fig. 6c). The result is likely due to the re-calibration process since DRM<sub>Hu</sub> found a background even larger than that of POLDER: about 0.12 at 532 nm. It is difficult to assess the truthfulness of this background, considering the given level of accuracy of the POLDER method and the uncertainties associated with the lidar calibration. We assume that these background values are not physical and could be due to some inherent limitations of the retrieval methods. From our data, however, we cannot exclude the possibility that there is always a background loading of particles above clouds (e.g. aerosols or fine droplets in formation). Nevertheless, the main result of our investigation is that POLDER and DRM methods compare well for most situations with a mean difference of about  $\pm 0.07$  in AOT at 532 nm.

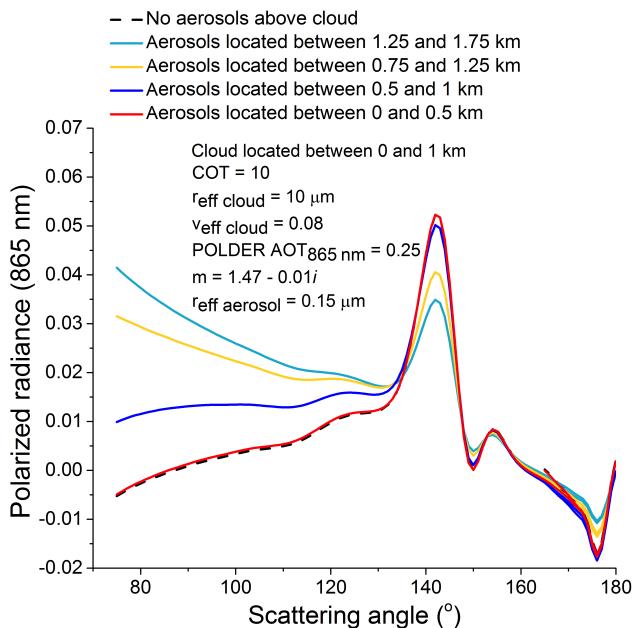
Although the number of cases is small, the results of the attached cases are interesting. They suggest that the lidar CALIOP and POLDER could be affected by layers of aerosols that physically and locally interact with the upper part of the cloud. In order to understand how the vertical profiles differ from one situation to another, we compared the CALIOP attenuated backscatter coefficient for attached and detached cases. We considered the period 2006–2010 and used data acquired over the entire globe. We only select the attached and detached cases where the cloud top

altitude is below 1.5 km, the COT is larger than 5 and the DRMSODA AOT<sub>532 nm</sub> is larger than 0.1. These criteria allow for selection of data that correspond to AAC events associated with similar cloud vertical extents and with significant AOTs. For these cases, we computed the average and median of the CALIOP level 1 attenuated backscatter coefficients at 532 nm. Figure 10 presents these results and some information concerning the mean and median values of CALIOP level 2 products: cloud top altitude, aerosol layer's base and top altitudes. The mean and median values computed for the AOTs retrieved by POLDER and DRMSODA and the numbers of sampled events are also reported. Two different types of profiles can be observed for the detached and attached situations. For the detached cases, the aerosol and cloud backscattering profiles can be easily distinguished in both the median and mean profiles. The strong peaks in the backscatter profiles at around 1 km correspond to the top of the clouds, whereas the increase in the lidar backscatter signal observed between 2 and 4 km in altitude comes from the aerosols. For the attached situations, the backscatter profiles are noisier, which is likely due to the fact that the number of detected events is smaller compared to detached cases. The top of the cloud layer is still clearly visible in the mean and median backscattered lidar signals, but two maxima can be observed. We assume that we sampled two different regimes of clouds. In addition, there is a continuous transition in the backscatter signal between the top of the cloud and the above molecular atmosphere that is most clearly visible in the median profiles. This signal does not appear for the detached cases. This signal could explain the non-negligible above-cloud AOTs retrieved by POLDER and DRMSODA for the attached cases (see Fig. 5). It is difficult to assess the origin of the signal. It might be due to aerosols layers that penetrate the cloud layers at the top of the clouds. Natural aerosol or fine droplets in formation, commonly present in the vicinity of the clouds, might also create this additional signal.

Another hypothesis that could explain the low AOT correlation for the attached cases is that the aerosols located within the cloud layer could affect the polarized radiances measured by POLDER. Note that the polarized radiance at 865 nm is not affected by the vertical position of the aerosol layer as long as there is no contact between the aerosol and the cloud. Since the operational algorithm developed for POLDER assumes that the entire aerosol layer is located above the clouds, an additional polarized signal coming from aerosol located within the cloud would lead to an overestimation of the above-cloud AOT retrieved from POLDER. To test this assumption, we modelled the polarized radiance measured by POLDER for AAC scenes, considering different vertical locations of the aerosol layer (Fig. 11). We used the SOS radiative transfer code (Lenoble et al., 2007) for this simulation. We considered a liquid water cloud located between 0 and 1 km. The particles (aerosol and cloud) are vertically homogeneously mixed. The COT is equal to 10 and the effective radius and variance are equal to 10  $\mu\text{m}$  and 0.08,



**Figure 10.** Median (a) and averaged (b) backscatter profiles ( $\text{km}^{-1} \text{sr}^{-1}$ ) for aerosol layer detached from the cloud layer (red) and aerosols attached to the top of the cloud (blue), for a period of 4.5 years on the global scale. For comparison, the molecular attenuated backscatter profile is shown as a green line. The data were filtered for a cloud top altitude lower than 1.5 km, a cloud optical thickness (COT) larger than 5 and for a DRM<sub>SODA</sub> AOT at 532 nm larger than 0.1. The number of 5 km horizontal-resolution pixels is also shown. The mean, standard deviation ( $\sigma$ ) and median of aerosol top altitude (ATA), aerosol base altitude (ABA) and cloud top altitude (CTA) are given for each situation. Same values are shown for POLDER AOT at and DRM<sub>SODA</sub> AOT at 532 nm.



**Figure 11.** Sensitivity study of polarized radiance at 865 nm to the relative position of the aerosol layer above the cloud. Simulation performed for a cloud layer located between 0 and 1 km and aerosol layers varying at different altitudes. The cloud droplet effective radius is fixed to  $10 \mu\text{m}$  and the effective variance is 0.08. The aerosol layer is characterized by an AOT of 0.25 at 865 nm, a refractive index of  $1.47 - 0.01i$  and an aerosol effective radius of  $0.15 \mu\text{m}$ .

respectively. The aerosol layer is characterized by an AOT of 0.25 at 865 nm, a refractive index of  $m = 1.47 - 0.01i$  and an effective radius of  $0.15 \mu\text{m}$ . Figure 11 shows the typical polarized feature for AAC events in case of detached situations (i.e. aerosols located between 1.25 and 1.75 km): a creation of polarization is observed at side and forward scattering angles, whereas the cloud bow magnitude decreases. For the attached case (aerosols between 0.75 and 1.25 km), the amount of polarization created at forward scattering angles decreases and the cloud bow attenuation is less significant in comparison with the detached scenario. When the aerosol layer is located within the upper part of the cloud layer (between 0.5 and 1 km) we still observe a weak polarized signal created at forward scattering angles. When the aerosol layer is located in the lower part of the cloud layer, the effects of the aerosols disappear since the polarized radiance scattered by the aerosols is lost due to multiple scattering occurring within the clouds. These simulations were processed with the POLDER algorithm (Waquet et al., 2013b). We recall that the LUTs used in this algorithm were built for detached situations. The algorithm retrieved an AOT of 0.09 at 865 nm when the aerosols are located within the upper part of the cloud layer. This demonstrates that polarized radiances are sensitive to aerosols situated within the clouds for the attached cases.

The DRM methods might also be impacted by the presence of aerosols within the clouds. Aerosols as a solution within the cloud droplets (i.e. internal mixture) might impact the chemical composition of the droplets and modify their ability to backscatter light. Figure 9 shows lidar ratio

computed for absorbing cloud droplets. We used an imaginary part of 0.0001 for the complex refractive index of the droplets. This might simulate, for instance, the properties of brown clouds contaminated by absorbing aerosols. The chosen value is in agreement with the refractive indices given for water containing soot inclusions with volume fractions ranging between  $10^{-4}$  and  $10^{-2}$  (Erlick, 2006). We observe a drastic increase of  $S_c$  with  $r_{\text{eff}}$  (from 21.7 sr at 5  $\mu\text{m}$  to 50 sr at 40  $\mu\text{m}$ ) when the water droplet is weakly absorbing. In the case of an external mixture, we assume that the presence of aerosols at the top of cloud might also modify the value of  $S_c$ . Any deviation from the 19 sr value assumed for the droplets lidar ratio in Eq. (9) will necessarily impact the retrieved AOT and the differences observed between the AOT estimates provided by the POLDER and DRM methods.

## 6 Conclusions

In this study, we compared and analysed the consistency of the AOT and AE retrievals above clouds from different passive and active techniques. We used the CALIOP operational algorithm (Winker et al., 2009), the POLDER polarization method (Waquet et al., 2013b) and the CALIOP-based depolarization ratio method ( $\text{DRM}_{\text{Hu}}$ ) (Hu et al., 2007a), for which we proposed a re-calibrated version of the DRM algorithm ( $\text{DRM}_{\text{SODA}}$ ). The observations were made for (a) three case studies corresponding to an African biomass-burning event, a Saharan dust event and a Siberian biomass-burning event; (b) a regional-scale analysis over South Atlantic Ocean, North Atlantic Ocean and North Pacific Ocean for a period of 6 months in 2008; and (c) a global-scale analysis for different vertical layer distributions for the period 2006–2010.

In the regional analysis, we observed that POLDER method and DRM are in good agreement when the microphysics of aerosols is dominated by fine-mode particles of biomass-burning aerosols (in the South Atlantic region,  $R^2 = 0.83$ ) or coarse-mode aerosols of dust (in the North Atlantic region,  $R^2 = 0.82$ ). A good correlation between these methods ( $R^2 = 0.68$ ) is also noticed in the global treatment, when the aerosol and cloud layers are well separated. Nevertheless, some of the detached cases considered in our study, mainly the ones associated with optically thick smoke layers, are likely to be incorrectly classified as detached. As a future perspective, these misclassified detached cases (due to strong attenuation of the CALIOP 532 nm signal) could be detected by controlling the CALIOP 1064 nm signal, which was shown to provide more sensitivity to the entire vertical extent of these absorbing aerosol layers. The CALIOP operational method largely underestimates the AOT above clouds in all situations, with respect to other methods.

The differences between the DRM and POLDER retrievals increase when a complex mixture of aerosols is expected (such as in the East Asia region). This is probably due to the

fact that the current algorithm developed for POLDER uses a limited number of microphysical models of aerosols. Also, the relative position of the aerosol layer above the cloud impacts the AOT retrievals from both active and passive measurements: the correlation decreases when the layers are in contact ( $R^2 = 0.36$ ), suggesting that aerosols at the top or within the cloud can affect the AOT retrievals. One hypothesis is that an additional polarized signal coming from aerosol located within the cloud could affect the polarization signal and method, which leads to an overestimation of the AOT retrieved with POLDER algorithm. The aerosols attached with or within the cloud also have the potential to impact the DRM retrievals by modifying the lidar ratio (and consequently the AOT) as a result of internal or external mixture.

Furthermore, we investigated potential biases in the retrieved AOT measured by POLDER and  $\text{DRM}_{\text{SODA}}$  as a function of MODIS cloud properties (i.e. droplet effective radius ( $r_{\text{eff}}$ ) and COT). The tendencies show an increase in the difference between the two methods for larger  $r_{\text{eff}}$ , suggesting sensitivity to the cloud droplet effective radius. For this reason, we recalculated the  $\text{DRM}_{\text{SODA}}$  AOT<sub>532 nm</sub>, taking into account the dependence of lidar ratio on  $r_{\text{eff}}$ , as this method assumes a constant lidar ratio regarding the droplet effective radius. By doing so, we observed a decrease in the difference between POLDER and DRM methods and a shift of the DRM AOT values from negative to positive. For a better accuracy of DRM retrievals in future studies, this correction should be taken into account. The results show also that the multiple scattering processes, which are more pronounced in optically thick clouds, could also affect the DRM technique.

All of the aforementioned situations have revealed that  $\text{DRM}_{\text{Hu}}$  has larger mean AOT than that of  $\text{DRM}_{\text{SODA}}$ . This is likely to be a consequence of the re-calibration performed for the  $\text{DRM}_{\text{SODA}}$  method. Actually, POLDER AOT<sub>532 nm</sub> values are consistently smaller than the ones of  $\text{DRM}_{\text{Hu}}$  and larger than those of  $\text{DRM}_{\text{SODA}}$ . The primary conclusion of our investigation is that POLDER and DRM techniques are comparable for the majority of cases, with a mean difference of about  $\pm 0.07$  in AOT at 532 nm, depending on lidar calibration.

Given the fact that each method relies upon different physical concepts, applied to different sensors and measurements, the high value of the correlation obtained for the AOT retrievals is a remarkable result that highlights the coherence between active and passive methods for aerosols above clouds. Nonetheless, more efforts have to be done to increase the accuracy of the methods in order to better understand aerosols above clouds and their related effects. Airborne measurements are extremely useful in providing information on aerosols' above-cloud properties. Several ongoing and planned airborne field campaigns will attempt to characterize the properties of biomass-burning aerosols over the South Atlantic Ocean (Zuidema et al., 2016). Planned measurements from the French Falcon 20 aircraft, equipped

with a high-resolution lidar, an airborne sun photometer and a POLDER-like sensor, will notably be considered for a future validation of CALIOP DRM and POLDER above-cloud aerosol products. Another perspective is to improve the POLDER algorithm by introducing additional dust or mixture models with larger or smaller effective radii values in the LUT. This would definitely improve the AOT and AE retrievals in more complex situations (such as East Asia region). Also, our results suggest that a combination of POLDER and DRM methods has the potential to detect aerosols within clouds. It is very relevant to study these situations, since they can affect the retrievals and provide important information regarding the cloud processes. A further perspective would be to exploit the synergy between CALIOP and POLDER to infer the direct aerosol radiative forcing, aerosol heating rates and the semi-direct effect of absorbing aerosols located above clouds.

*Data availability.* All data are available at ICARE website on-line archive: <http://www.icare.univ-lille1.fr/archive>.

*Competing interests.* The authors declare that they have no conflict of interest.

*Acknowledgements.* Lucia Deaconu's grant is provided by the CaPPA project (Chemical and Physical Properties of the Atmosphere), which is funded by the French National Research Agency (ANR) through the PIA (Programme d'Investissement d'Avenir) under contract ANR-11-LABX-0005-01 and by the Regional Council Hauts-de-France and the European Funds for Regional Economic Development (FEDER).

Edited by: Piet Stammes

Reviewed by: Hiren Jethva and two anonymous referees

## References

- Balkanski, Y., Schulz, M., Claquin, T., and Guibert, S.: Reevaluation of Mineral aerosol radiative forcings suggests a better agreement with satellite and AERONET data, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 81–95, <https://doi.org/10.5194/acp-7-81-2007>, 2007.
- Bates, D. R.: Rayleigh scattering by air, *Planet. Space Sci.*, 32, 785–790, 1984.
- Cao, X., Roy, G., Roy, N., and Bernier, R.: Comparison of the relationships between lidar integrated backscattered light and accumulated depolarization ratios for linear and circular polarization for water droplets, fog oil, and dust, *Appl. Opt.*, 48, 4130–4141, <https://doi.org/10.1364/AO.48.004130>, 2009.
- Cattrall, C., Reagan, J., Thome, K., and Dubovik, O.: Variability of aerosol and spectral lidar and backscatter and extinction ratios of key aerosol types derived from selected Aerosol Robotic Network locations, *J. Geophys. Res.*, 110, D10S11, <https://doi.org/10.1029/2004JD005124>, 2005.
- Chand, D., Anderson, T. L., Wood, R., Charlson, R. J., Hu, Y., Liu, Z., and Vaughan, M.: Quantifying above-cloud aerosol using spaceborne lidar for improved understanding of cloudy-sky direct climate forcing, *J. Geophys. Res.*, 113, D13206, <https://doi.org/10.1029/2007JD009433>, 2008.
- Chand, D., Wood, R., Anderson, T. L., Satheesh, S. K., and Charlson, R. J.: Satellite-derived direct radiative effect of aerosols dependent on cloud cover, *Nat. Geosci.*, 2, 181–184, <https://doi.org/10.1038/ngeo437>, 2009.
- Costantino, L. and Bréon, F.-M.: Aerosol indirect effect on warm clouds over South-East Atlantic, from co-located MODIS and CALIPSO observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 69–88, <https://doi.org/10.5194/acp-13-69-2013>, 2013.
- Deuzé, J. L., Herman, M., and Santer, R.: Fourier series expansion of the transfer equation in the atmosphere-ocean system, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 41, 483–494, [https://doi.org/10.1016/0022-4073\(89\)90118-0](https://doi.org/10.1016/0022-4073(89)90118-0), 1989.
- Dubovik, O., Holben, B., Eck, T. F., Smirnov, A., Kaufman, Y. J., King, M. D., Tanré, D., and Slutsker, I.: Variability of Absorption and Optical Properties of Key Aerosol Types Observed in Worldwide Locations, *J. Atmos. Sci.*, 59, 590–608, [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(2002\)059<0590:VOAAOP>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(2002)059<0590:VOAAOP>2.0.CO;2), 2002.
- Erlick, C.: Effective Refractive Indices of Water and Sulfate Drops Containing Absorbing Inclusions, *J. Atmos. Sci.*, 63, 754–763, <https://doi.org/10.1175/JAS3635.1>, 2006.
- Feng, N. and Christopher, S. A.: Measurement-based estimates of direct radiative effects of absorbing aerosols above clouds, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 120, 6908–6921, <https://doi.org/10.1002/2015JD023252>, 2015.
- De Graaf, M., Bellouin, N., Tilstra, L. G., Haywood, J., and Stammes, P.: Aerosol direct radiative effect of smoke over clouds over the southeast Atlantic Ocean from 2006 to 2009, *Geophys. Res. Lett.*, 41, 7723–7730, <https://doi.org/10.1002/2014GL061103>, 2014.
- Hansen, J., Sato, M., and Ruedy, R.: Radiative forcing and climate response, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 102, 6831–6864, <https://doi.org/10.1029/96JD03436>, 1997.
- Hasekamp, O. P.: Capability of multi-viewing-angle photopolarimetric measurements for the simultaneous retrieval of aerosol and cloud properties, *Atmos. Meas. Tech.*, 3, 839–851, <https://doi.org/10.5194/amt-3-839-2010>, 2010.
- Haywood, J. M., Osborne, S. R., and Abel, S. J.: The effect of overlying absorbing aerosol layers on remote sensing retrievals of cloud effective radius and cloud optical depth, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 130, 779–800, <https://doi.org/10.1256/qj.03.100>, 2004.
- Herman, M., Deuzé, J. L., Marchand, A., Roger, B., and Lallart, P.: Aerosol remote sensing from POLDER/ADEOS over the ocean: Improved retrieval using a nonspherical particle model, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 110, 1–11, <https://doi.org/10.1029/2004JD004798>, 2005.
- Hu, Y.: Depolarization ratio-effective lidar ratio relation: Theoretical basis for space lidar cloud phase discrimination, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L11812, <https://doi.org/10.1029/2007GL029584>, 2007.
- Hu, Y., Liu, Z., Winker, D., Vaughan, M., Noel, V., Bissonnette, L., Roy, G., and McGill, M.: Simple relation between lidar multiple scattering and depolarization for water clouds, *Opt. Lett.*, 31, 1809, <https://doi.org/10.1364/OL.31.001809>, 2006.

- Hu, Y., Vaughan, M., Liu, Z., Powell, K., and Rodier, S.: Retrieving Optical Depths and Lidar Ratios for Transparent Layers Above Opaque Water Clouds From CALIPSO Lidar Measurements, *IEEE Geosci. Remote Sens.*, 4, 523–526, <https://doi.org/10.1109/LGRS.2007.901085>, 2007a.
- Hu, Y., Vaughan, M., Liu, Z., Lin, B., Yang, P., Flittner, D., Hunt, B., Kuehn, R., Huang, J., Wu, D., Rodier, S., Powell, K., Trepte, C., and Winker, D.: The depolarization – attenuated backscatter relation: CALIPSO lidar measurements vs. theory, *Opt. Express*, 15, 5327–5332, <https://doi.org/10.1364/OE.15.005327>, 2007b.
- Hunt, W. H., Winker, D. M., Vaughan, M. A., Powell, K. A., Lucker, P. L., Weimer, C., Hunt, W. H., Winker, D. M., Vaughan, M. A., Powell, K. A., Lucker, P. L., and Weimer, C.: CALIPSO Lidar Description and Performance Assessment, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 26, 1214–1228, <https://doi.org/10.1175/2009JTECHA1223.1>, 2009.
- 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, edited by: Stocker, T. F., Qin, D., Plattner, G.-K., Tignor, M., Allen, S. K., Boschung, J., Nauels, A., Xia, Y., Bex, V., and Midgley, P. M., Cambridge University Press, Cambridge, UK, New York, NY, USA, 1535 pp., <https://doi.org/10.1017/CBO9781107415324>, 2013.
- Jethva, H., Torres, O., Remer, L. A., and Bhartia, P. K.: A color ratio method for simultaneous retrieval of aerosol and cloud optical thickness of above-cloud absorbing aerosols from passive sensors: Application to MODIS measurements, *IEEE T. Geosci. Remote*, 51, 3862–3870, <https://doi.org/10.1109/TGRS.2012.2230008>, 2013.
- Jethva, H., Torres, O., Waquet, F., Chand, D., and Hu, Y.: How do A-train sensors intercompare in the retrieval of above-cloud aerosol optical depth? A case study-based assessment, *Geophys. Res. Lett.*, 41, 186–192, <https://doi.org/10.1002/2013GL058405>, 2014.
- Johnson, B. T., Shine, K. P., and Forster, P. M.: The semi-direct aerosol effect: Impact of absorbing aerosols on marine stratocumulus, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 130, 1407–1422, <https://doi.org/10.1256/qj.03.61>, 2004.
- Josset, D., Hu, Y., Pelon, J., Zhai, P., Tanré, D., Rogers, R., Lucker, P., Trepte, C., Powell, K., Rodier, S., Pascal, N., and Team, T. I.: Advances in Research Products From CALIPSO: Optical Depth Direct Retrieval Over Ocean, Water Clouds and Land, 25th International Laser Radar Conference (ILRC), Curran Associates, Inc., Curran Associates, Inc., 1280–1283, 2010.
- Josset, D., Rogers, R., Pelon, J., Hu, Y., Liu, Z., Omar, A., Zhai, P.-W., Fernald, F. G., Herman, B. M., Reagan, J. A., Winker, D. M., Pelon, J., Coakley, J. A., Ackerman, S. A., Charlson, R. J., Colarco, P. R., Flamant, P., Fu, Q., Hoff, R., Kittaka, C., Kubar, T. L., LeTreut, H., McCormick, M. P., Megie, G., Poole, L., Powell, K., Trepte, C., Vaughan, M. A., Wielicki, B. A., Stephens, G. L., Vane, D. G., Tanelli, S., Im, E., Durden, S., Rokey, M., Reinke, D., Partain, P., Mace, G. G., Austin, R., Haynes, J., Lebsack, M., Suzuki, K., Waliser, D., Wu, D., Kay, J., Gettelman, A., Wang, Z., and Marchand, R.: CALIPSO lidar ratio retrieval over the ocean, *Opt. Express*, 19, 18696–18706, <https://doi.org/10.1364/OE.19.018696>, 2011.
- Josset, D., Pelon, J., Hu, Y., Rogers, R., Liu, Z., Omar, A., Vaughan, M., Zhai, P., and Team, I.: Global scale lidar ratio retrieval over the ocean, 26th International Laser Radar Conference (ILRC 26), Porto Heli, Greece, 25–29 June, 2012.
- Kaufman, Y. J., Tanré, D., and Boucher, O.: A satellite view of aerosols in the climate system, *Nature*, 419, 215–23, <https://doi.org/10.1038/nature01091>, 2002.
- Keil, A. and Haywood, J. M.: Solar radiative forcing by biomass burning aerosol particles during SAFARI 2000: A case study based on measured aerosol and cloud properties, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 108, 8467, <https://doi.org/10.1029/2002JD002315>, 2003.
- King, L. V.: On the Complex Anisotropic Molecule in Relation to the Dispersion and Scattering of Light, *P. Roy. Soc. A-Math. Phys.*, 104, 333–357, 1923.
- Knobelspiesse, K., Cairns, B., Ottaviani, M., Ferrare, R., Hair, J., Hostetler, C., Obland, M., Rogers, R., Redemann, J., Shinozuka, Y., Clarke, A., Freitag, S., Howell, S., Kapustin, V., and McNaughton, C.: Combined retrievals of boreal forest fire aerosol properties with a polarimeter and lidar, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 7045–7067, <https://doi.org/10.5194/acp-11-7045-2011>, 2011.
- Lenoble, J., Herman, M., Deuzé, J. L., Lafrance, B., Santer, R., and Tanré, D.: A successive order of scattering code for solving the vector equation of transfer in the earth's atmosphere with aerosols, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 107, 479–507, <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2007.03.010>, 2007.
- Meyer, K., Platnick, S., Oreopoulos, L., and Lee, D.: Estimating the direct radiative effect of absorbing aerosols overlying marine boundary layer clouds in the southeast Atlantic using MODIS and CALIOP, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 118, 4801–4815, <https://doi.org/10.1002/jgrd.50449>, 2013.
- Meyer, K., Platnick, S., and Zhang, Z.: Simultaneously inferring above-cloud absorbing aerosol optical thickness and underlying liquid phase cloud optical and microphysical properties using MODIS, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 120, 5524–5547, <https://doi.org/10.1002/2015JD023128>, 2015.
- Miles, N. L., Verlinde, J., Clothiaux, E. E., Miles, N. L., Verlinde, J., and Clothiaux, E. E.: Cloud Droplet Size Distributions in Low-Level Stratiform Clouds, *J. Atmos. Sci.*, 57, 295–311, [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(2000\)057<0295:CSDIL>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(2000)057<0295:CSDIL>2.0.CO;2), 2000.
- Myhre, G., Shindell, D., Bréon, F.-M., Collins, W., Fuglestvedt, J., Huang, J., Koch, D., Lamarque, J.-F., Lee, D., Mendoza, B., Nakajima, T., Robock, A., Stephens, G., Takemura, T., and Zhang, H.: Anthropogenic and Natural Radiative Forcing, Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC), Cambridge University Press, 659–740, <https://doi.org/10.1017/CBO9781107415324.018>, 2013a.
- Myhre, G., Samset, B. H., Schulz, M., Balkanski, Y., Bauer, S., Berntsen, T. K., Bian, H., Bellouin, N., Chin, M., Diehl, T., Easter, R. C., Feichter, J., Ghan, S. J., Hauglustaine, D., Iversen, T., Kinne, S., Kirkevåg, A., Lamarque, J.-F., Lin, G., Liu, X., Lund, M. T., Luo, G., Ma, X., van Noije, T., Penner, J. E., Rasch, P. J., Ruiz, A., Selander, Ø., Skeie, R. B., Stier, P., Takemura, T., Tsigaridis, K., Wang, P., Wang, Z., Xu, L., Yu, H., Yu, F., Yoon, J.-H., Zhang, K., Zhang, H., and Zhou, C.: Radiative forcing of the direct aerosol effect from AeroCom Phase II simulations, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 1853–1877, <https://doi.org/10.5194/acp-13-1853-2013>, 2013b.
- O'Connor, E. J., Illingworth, A. J., and Hogan, R. J.: A Technique for Autocalibration of Cloud Lidar, *J. At-*

- mos. Ocean. Tech., 21, 777–786, [https://doi.org/10.1175/1520-0426\(2004\)021<0777:ATFAOC>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0426(2004)021<0777:ATFAOC>2.0.CO;2), 2004.
- Omar, A. H., Won, J.-G., Winker, D. M., Yoon, S.-C., Dubovik, O., and McCormick, M. P.: Development of global aerosol models using cluster analysis of Aerosol Robotic Network (AERONET) measurements, *J. Geophys. Res.*, 110, 10–14, <https://doi.org/10.1029/2004JD004874>, 2005.
- Omar, A. H., Winker, D. M., Vaughan, M. A., Hu, Y., Trepte, C. R., Ferrare, R. A., Lee, K.-P., Hostetler, C. A., Kittaka, C., Rogers, R. R., Kuehn, R. E., Liu, Z., Omar, A. H., Winker, D. M., Vaughan, M. A., Hu, Y., Trepte, C. R., Ferrare, R. A., Lee, K.-P., Hostetler, C. A., Kittaka, C., Rogers, R. R., Kuehn, R. E., and Liu, Z.: The CALIPSO Automated Aerosol Classification and Lidar Ratio Selection Algorithm, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 26, 1994–2014, <https://doi.org/10.1175/2009JTECHA1231.1>, 2009.
- Peers, F., Waquet, F., Cornet, C., Dubuisson, P., Ducos, F., Goloub, P., Szczap, F., Tanré, D., and Thieuleux, F.: Absorption of aerosols above clouds from POLDER/PARASOL measurements and estimation of their direct radiative effect, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 4179–4196, <https://doi.org/10.5194/acp-15-4179-2015>, 2015.
- Peers, F., Bellouin, N., Waquet, F., Ducos, F., Goloub, P., Mollard, J., Myhre, G., Skeie, R. B., Takemura, T., Tanré, D., Thieuleux, F., and Zhang, K.: Comparison of aerosol optical properties above clouds between POLDER and AeroCom models over the South East Atlantic Ocean during the fire season, *Geophys. Res. Lett.*, 43, 3991–4000, <https://doi.org/10.1002/2016GL068222>, 2016.
- Pinnick, R. G., Jennings, S. G., Chýlek, P., Ham, C., and Grandy, W. T.: Backscatter and extinction in water clouds, *J. Geophys. Res.*, 88, 6787, <https://doi.org/10.1029/JC088iC11p06787>, 1983.
- Platt, C. M. R.: Remote Sounding of High Clouds: I. Calculation of Visible and Infrared Optical Properties from Lidar and Radiometer Measurements, *J. Appl. Meteorol.*, 18, 1130–1143, [https://doi.org/10.1175/1520-0450\(1979\)018<1130:RSOHC>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0450(1979)018<1130:RSOHC>2.0.CO;2), 1979.
- Powell, K., Vaughan, M., Winker, D., Lee, K. P., Pitts, M., Trepte, C., Detweiler, P., Hunt, W., Lambeth, J., and Lucker, P.: Cloud–Aerosol LIDAR Infrared Pathfinder Satellite Observations (CALIPSO), Data Manag. Syst. Data, Prod. Cat. Doc. No. PC-SCI-503, Release, 3, 2010.
- Ramanathan, V., Crutzen, P. J., Kiehl, J. T., and Rosenfeld, D.: Aerosols, climate, and the hydrological cycle., *Science*, 294, 2119–2124, <https://doi.org/10.1126/science.1064034>, 2001.
- Riedi, J., Marchant, B., Platnick, S., Baum, B. A., Thieuleux, F., Oudard, C., Parol, F., Nicolas, J.-M., and Dubuisson, P.: Cloud thermodynamic phase inferred from merged POLDER and MODIS data, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 11851–11865, <https://doi.org/10.5194/acp-10-11851-2010>, 2010.
- Rosenfeld, D.: Suppression of Rain and Snow by Urban and Industrial Air Pollution, *Science*, 287, 1793–1796, <https://doi.org/10.1126/science.287.5459.1793>, 2000.
- Sassen, K.: The Polarization Lidar Technique for Cloud Research: A Review and Current Assessment, *B. Am. Meteorol. Soc.*, 72, 1848–1866, [https://doi.org/10.1175/1520-0477\(1991\)072<1848:TPLTFC>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0477(1991)072<1848:TPLTFC>2.0.CO;2), 1991.
- Sassen, K. and Zhu, J.: A global survey of CALIPSO linear depolarization ratios in ice clouds: Initial findings, *J. Geophys. Res.*, 114, D00H07, <https://doi.org/10.1029/2009JD012279>, 2009.
- Tanré, D., Bréon, F. M., Deuzé, J. L., Dubovik, O., Ducos, F., François, P., Goloub, P., Herman, M., Lefèvre, A., and Waquet, F.: Remote sensing of aerosols by using polarized, directional and spectral measurements within the A-Train: the PARASOL mission, *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 1383–1395, <https://doi.org/10.5194/amt-4-1383-2011>, 2011.
- Torres, O., Jethva, H., and Bhartia, P. K.: Retrieval of Aerosol Optical Depth above Clouds from OMI Observations: Sensitivity Analysis and Case Studies, *J. Atmos. Sci.*, 69, 1037–1053, <https://doi.org/10.1175/JAS-D-11-0130.1>, 2012.
- Torres, O., Ahn, C., and Chen, Z.: Improvements to the OMI near-UV aerosol algorithm using A-train CALIOP and AIRS observations, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 3257–3270, <https://doi.org/10.5194/amt-6-3257-2013>, 2013.
- Twomey, S.: Pollution and the planetary albedo, *Atmos. Environ.*, 8, 1251–1256, [https://doi.org/10.1016/0004-6981\(74\)90004-3](https://doi.org/10.1016/0004-6981(74)90004-3), 1974.
- Vaughan, M. A., Powell, K. A., Winker, D. M., Hostetler, C. A., Kuehn, R. E., Hunt, W. H., Getzewich, B. J., Young, S. A., Liu, Z., and McGill, M. J.: Fully Automated Detection of Cloud and Aerosol Layers in the CALIPSO Lidar Measurements, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 26, 2034–2050, <https://doi.org/10.1175/2009JTECHA1228.1>, 2009.
- Waquet, F., Riedi, J., Labonne, L. C., Goloub, P., Cairns, B., Deuzé, J.-L., and Tanré, D.: Aerosol Remote Sensing over Clouds Using A-Train Observations, *J. Atmos. Sci.*, 66, 2468–2480, <https://doi.org/10.1175/2009JAS3026.1>, 2009.
- Waquet, F., Peers, F., Ducos, F., Goloub, P., Platnick, S., Riedi, J., Tanré, D., and Thieuleux, F.: Global analysis of aerosol properties above clouds, *Geophys. Res. Lett.*, 40, 5809–5814, <https://doi.org/10.1002/2013GL057482>, 2013a.
- Waquet, F., Cornet, C., Deuzé, J.-L., Dubovik, O., Ducos, F., Goloub, P., Herman, M., Lapuyonok, T., Labonne, L. C., Riedi, J., Tanré, D., Thieuleux, F., and Vanbauce, C.: Retrieval of aerosol microphysical and optical properties above liquid clouds from POLDER/PARASOL polarization measurements, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 991–1016, <https://doi.org/10.5194/amt-6-991-2013>, 2013b.
- Waquet, F., Pérez, J.-C., Peers, F., Goloub, P., Ducos, F., Thieuleux, F., and Tanré, D.: Global detection of absorbing aerosols over the ocean in the red and near-infrared spectral region, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 121, 10902–10918, <https://doi.org/10.1002/2016JD025163>, 2016.
- Warren, S. G., Hahn, C. J., London, J., Chervin, R. M., and Jenne, R. L.: Global Distribution of Total Cloud Cover and Cloud Amounts over the Ocean, NCAR Tech. Note, NCAR/TN-27, <https://doi.org/10.2172/5415329>, 1988.
- Wilcox, E. M.: Stratocumulus cloud thickening beneath layers of absorbing smoke aerosol, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 11769–11777, <https://doi.org/10.5194/acp-10-11769-2010>, 2010.
- Winker, D. M., Hunt, W. H., and McGill, M. J.: Initial performance assessment of CALIOP, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L19803, <https://doi.org/10.1029/2007GL030135>, 2007.
- Winker, D. M., Vaughan, M. A., Omar, A., Hu, Y., Powell, K. A., Liu, Z., Hunt, W. H., and Young, S. A.: Overview of the CALIPSO Mission and CALIOP Data Pro-

- cessing Algorithms, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 26, 2310–2323, <https://doi.org/10.1175/2009JTECHA1281.1>, 2009.
- Winker, D. M., Pelon, J., Jr., J. A. C., Ackerman, S. A., Charlson, R. J., Colarco, P. R., Flamant, P., Fu, Q., Hoff, R. M., Kittaka, C., Kubar, T. L., Treut, H. Le, McCormick, M. P., Mégie, G., Poole, L., Powell, K., Trepte, C., Vaughan, M. A. and Wielicki, B. A.: The CALIPSO Mission: A Global 3D View of Aerosols and Clouds, *B. Am. Meteorol. Soc.*, 91, 1211–1229, <https://doi.org/10.1175/2010BAMS3009.1>, 2010.
- Xu, M. and Alfano, R. R.: Random Walk of Polarized Light in Turbid Media, *Phys. Rev. Lett.*, 95, 213901, <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.95.213901>, 2005.
- Young, S. A. and Vaughan, M. A.: The Retrieval of Profiles of Particulate Extinction from Cloud-Aerosol Lidar Infrared Pathfinder Satellite Observations (CALIPSO) Data: Algorithm Description, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 26, 1105–1119, <https://doi.org/10.1175/2008JTECHA1221.1>, 2009.
- Yu, H., Kaufman, Y. J., Chin, M., Feingold, G., Remer, L. A., Anderson, T. L., Balkanski, Y., Bellouin, N., Boucher, O., Christopher, S., DeCola, P., Kahn, R., Koch, D., Loeb, N., Reddy, M. S., Schulz, M., Takemura, T., and Zhou, M.: A review of measurement-based assessments of the aerosol direct radiative effect and forcing, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 613–666, <https://doi.org/10.5194/acp-6-613-2006>, 2006.
- Yu, H., Remer, L. A., Chin, M., Bian, H., Kleidman, R. G., and Diehl, T.: A satellite-based assessment of transpacific transport of pollution aerosol, *J. Geophys. Res.*, 113, D14S12, <https://doi.org/10.1029/2007JD009349>, 2008.
- Zhang, Y. H., Wooster, M. J., Tutubalina, O., and Perry, G. L. W.: Monthly burned area and forest fire carbon emission estimates for the Russian Federation from SPOT VGT, *Remote Sens. Environ.*, 87, 1–15, [https://doi.org/10.1016/S0034-4257\(03\)00141-X](https://doi.org/10.1016/S0034-4257(03)00141-X), 2003.
- Zhang, Z., Meyer, K., Yu, H., Platnick, S., Colarco, P., Liu, Z., and Oreopoulos, L.: Shortwave direct radiative effects of above-cloud aerosols over global oceans derived from 8 years of CALIOP and MODIS observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 2877–2900, <https://doi.org/10.5194/acp-16-2877-2016>, 2016.
- Zuidema, P., Redemann, J., Haywood, J., Wood, R., Piketh, S., Hipondoka, M., Formenti, P., Zuidema, P., Redemann, J., Haywood, J., Wood, R., Piketh, S., Hipondoka, M., and Formenti, P.: Smoke and Clouds above the Southeast Atlantic: Upcoming Field Campaigns Probe Absorbing Aerosol's Impact on Climate, *B. Am. Meteorol. Soc.*, 97, 1131–1135, <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-15-00082.1>, 2016.