N° d'ordre : 41933

Université Lille 1 Sciences et Technologies

THESE

pour l'obtention du grade de : Docteur de l'Université de Lille 1

Spécialité :

Optique et Lasers, Physico-Chimie de l'Atmosphère

Par

Fanny PEERS

Caractérisation des propriétés des aérosols au-dessus des nuages et de leur effet direct avec POLDER/PARASOL

Thèse soutenue le 7 décembre 2015 devant le jury composé de :

D. TANRÉ	Directeur de Recherche	LOA, Lille 1	Président du Jury
FM. BRÉON	Directeur de Recherche	LSCE, CEA	Rapporteur
J. M. HAYWOOD	Professeur	Met Office	Rapporteur
N. BELLOUIN	Chercheur	University of Reading	Examinateur
A. LIFERMANN	Ingénieur CNES	CNES Toulouse	Invitée
P. GOLOUB	Professeur	LOA, Lille 1	Directeur de Thèse
F. WAQUET	Maître de Conférence	LOA, Lille 1	Codirecteur de Thèse

Laboratoire d'Optique Atmosphérique

U.F.R de Physique Université Lille 1 – Sciences et Technologies 59655 Villeneuve d'Ascq France

Résumé

Les aérosols sont une composante atmosphérique dont l'impact climatique figure parmi les plus incertains (IPCC, 2014). Cette incertitude est particulièrement forte lorsque ces particules sont localisées au-dessus et en contact avec les nuages, où elles interagissent à la fois avec le rayonnement et les nuages. Ce constat nous impose d'améliorer la représentation des aérosols et des nuages dans les modèles climatiques.

Si les capteurs satellitaires passifs jouent un rôle important dans l'observation des aérosols, les algorithmes de restitution de leurs propriétés sont jusqu'à présent limités à l'atmosphère sans nuage. De plus, les aérosols au-dessus des nuages altèrent la restitution des propriétés optiques et microphysiques des nuages par ces mêmes capteurs.

Notre effort a porté sur la détection et la caractérisation des aérosols au-dessus des nuages d'eau liquide en s'appuyant sur le capteur satellitaire POLDER/PARASOL. Nous avons mis en place une nouvelle méthode d'inversion des luminances totales et polarisées pour restituer les propriétés clefs des aérosols et des nuages.

Ensuite, nous avons développé une procédure de calcul de l'« effet direct » des aérosols en utilisant les propriétés issues de notre méthode d'inversion. Les flux radiatifs ainsi calculés ont été comparés avec succès à ceux déduits plus directement des mesures du capteur CERES.

Ces propriétés ont également été utilisées, régionalement, pour évaluer la fiabilité de la représentation des aérosols au-dessus des nuages dans les modèles AeroCom.

Enfin, nous présentons une première analyse de la distribution planétaire annuelle des propriétés des aérosols au-dessus des nuages et de leur effet direct.

Abstract

Aerosols remain one of the atmospheric components associated with the highest uncertainty on the climate impact (IPCC, 2014). This uncertainty is especially large for aerosols located above or within the clouds, where they can interact with both radiations and clouds. This statement highlights the need to improve the representation of aerosols and clouds in climate models.

Passive satellite instruments play a key role in the aerosol monitoring. However, current aerosol retrieval algorithms are restricted to cloud-free atmosphere. Moreover, aerosols overlaying clouds affect the retrieval of cloud optical and microphysical properties from those same sensors.

In the first place, the aim of this work was to detect and characterize aerosols above liquid clouds using the satellite instrument POLDER/PARASOL. We have set up a new method to retrieve key aerosol and cloud properties using a combination of radiance and polarization measurements.

Then, we have developed a procedure to compute the aerosol "direct effect" which relies on the aerosols properties deduced from our retrieval methodology. The radiative fluxes calculated with this method have been successfully compared to the ones deduced more directly from the measurements of the CERES sensor.

The aerosol properties have also been used to assess the ability of the models from the AeroCom community to represent above-cloud aerosols regionally.

Finally, we present a first analysis of the annual distribution at global-scale of aerosol properties above clouds and their direct effect.

Remerciements

A l'issue de la rédaction, j'ai à cœur de remercier les nombreuses personnes qui ont contribué et soutenu (de manière directe, semi-directe et indirecte) ce travail.

Je commence par exprimer ma reconnaissance envers mes encadrants, Fabien Waquet et Philippe Goloub, pour leur disponibilité, leur investissement, leurs précieux conseils ainsi que leur grande patience au moment de la relecture de mon manuscrit. Je les remercie de m'avoir guidée depuis le stage de master et de m'avoir confié ce sujet de thèse, grâce auquel j'ai tant appris et qui continue de nous offrir de beaux résultats. J'espère que notre collaboration durera encore longtemps.

Je remercie le président de mon jury de thèse, Didier Tanré, pour l'intérêt qu'il a porté à mon travail, pour son écoute attentive et ses conseils avisés. Un grand merci à François-Marie Bréon et Jim Haywood pour m'avoir fait l'honneur de rapporter ma thèse, ainsi qu'à Nicolas Bellouin et Anne Lifermann, pour avoir accepté de faire partie de mon jury de soutenance. Vos regards critiques et vos commentaires pertinents m'ont permis d'apporter un nouvel éclairage sur mes travaux et ont été pour moi d'une extrême valeur.

J'adresse ensuite mes remerciements au directeur du Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Frédéric Parol, pour m'avoir accueillie au sein de son établissement et pour m'avoir procuré d'excellentes conditions de travail. Je remercie aussi Anne Priem et Marie-Lyse Liévin pour leur soutien précieux et Isabelle Favier pour son aide, en particulier le jour de la soutenance. Je remercie Christine Deroo et Romain De Filippi, pour le soutien informatique. Un grand merci également à l'ensemble des membres du laboratoire, notamment à mes collègues de la pause café de 17h, pour toute cette convivialité partagée.

Je tiens à remercier tous ceux sans qui ce manuscrit aurait été bien plus court : Céline Cornet et Frédéric Szczap pour les simulations sur les hétérogénéités nuageuses, Laurent Labonnote et Jérôme Riedi pour leur aide sur les nuages et les produits de la chaîne PML2, Philippe Dubuisson et Mathieu Compiègne pour leurs éclairages sur les codes de transfert radiatif, et Wenying Su pour les données CERES. Merci également à Fabrice Ducos et François Thieuleux pour tout le travail d'intégration du code à la

chaîne PML2, pour le traitement à grande échelle des données POLDER, pour leur grande patience et pour toute l'aide qu'ils m'ont apportée. Je souhaite aussi remercier chaleureusement Nicolas Bellouin qui m'a accueillie dans son département et qui m'a donné cette superbe opportunité de découvrir les modèles et de faire ce travail de comparaison avec POLDER. Merci pour cette expérience et toutes ces discussions que nous avons eues. I'm taking this opportunity to thank James Mollard and all the 3rd floor guys for the way they welcomed me. Many thanks to Kala and Jacob for making me feel at home during these weeks at Reading. I will never forget the Kizomba class!

Enfin, j'ai une pensée très émue envers toutes les personnes qui m'ont accompagnée ces dernières années et qui m'ont suivie dans cette aventure avec leur sympathie, leur affection et leurs rires. Je remercie la Team du P5 et de la traditionnelle bière du jeudi. Tout d'abord, ceux qui m'ont montré le chemin : Rudy, mon modèle devant l'éternel (sauf pour la barbe), Adrien, et son sens acerbe de la formule, Augustin, pour tous ces petits et grands moments de n'importe quoi et pour avoir tout suivi jusqu'à la fin en direct-live. Ensuite, mes compagnons de la revanche des moyens : Pierre-Sébastien (n'oublie pas l'écran total) et Antoine (heureusement que tu étais là pour croire en nous, je te dois beaucoup). Enfin, je n'oublie pas Romain, chez qui tout à commencer au P5, Quentin, et les bretzels en forme de cœur (tu vas négocier la dernière année avec beaucoup de talent j'en suis sûre), Anne (aka Jean-Luc, aka Gene Kelly, aka Dewey, aka « ce vieux briscard ») et Julie (nos échanges de cat gifs et nos chamallows au coin des braises). Un grand merci aussi à la bande – Timothée (et notre Team des Impossibles), Panda et Seb - pour avoir assurer les moments de break. Merci à Pauline, pour tous nos fous-rires incontrôlables, pour les confidences et pour être toujours là, même après mes longues absences. Je remercie enfin ma famille, sur qui je peux toujours compter: mon père, mes bienveillants grands frères, Sylvain, Rémi et Nicolas, mes belles-sœurs, Sandrine, Mathilde et Laura, mes adorables neveux, Ema, Romain et Zélie (pour avoir entraîner ma mémoire à court et long terme à grands coups de générique de Pat' Patrouille), ma tante Odile (et toute la petite famille), ma belle-famille ... Un tendre merci à ma mère pour m'avoir tout donné, de façon inconditionnelle. Pour finir, je souhaite dédier ce dernier merci à Vianney, qui m'a toujours encouragée, à qui je dois d'être toujours présent à mes côtés, et tellement plus encore.

Table des matières

1	Introduction générale	1
	1.1 Le changement climatique	1
	1.1.1 Évolution globale et effets régionaux	1
	1.1.2 Les aérosols atmosphériques	3
	1.1.3 Le rôle des aérosols	5
	1.2 Caractérisation du rayonnement, des aérosols et des nuages	7
	1.2.1 Grandeurs radiatives	7
	1.2.1.1 Paramètre de Stokes	7
	1.2.1.2 Luminance normalisée et réflectance	10
	1.2.1.3 Flux et albédo	11
	1.2.2 Propriétés optiques des particules	12
	1.2.2.1 Extinction	12
	1.2.2.2 Diffusion	14
	1.2.3 Propriétés microphysiques des aérosols	18
	1.2.3.1 Distribution en taille	18
	1.2.3.2 Indice de réfraction	20
	1.2.3.3 Morphologie	20
	1.2.4 Propriétés des nuages	22
	1.2.4.1 Nomenclature	22
	1.2.4.2 Phase thermodynamique	22
	1.2.4.3 Microphysique des particules nuageuses	23
	1.3 Interactions des aérosols avec le rayonnement et les nuages	24
	1.3.1 Effet direct	25
	1.3.2 Effet semi-direct	26
	1.3.3 Effets indirects	28
	1.4 Les aérosols dans les scènes nuageuses	29
	1.4.1 Incertitudes dans les modèles climatiques	29
	1.4.2 Cas du sud-est de l'océan Altantique	29
	1.4.3 Les limitations de l'observation	32
	1.5 Objectifs de la thèse	35

2	Outils numériques et instrumentaux	37
	2.1 Codes de transfert radiatif	37
	2.1.1 La Méthode des Ordres Successifs de diffusion	38
	2.1.2 La méthode de l'Adding-Doubling	38
	2.1.3 GAME	39
	2.1.4 3DMCPOL et 3DCLOUD	39
	2.2 POLDER/PARASOL	41
	2.2.1 L'instrument POLDER	41
	2.2.2 Principe de la mesure	42
	2.2.2.1 Étalonnage	42
	2.2.2.2 Mesures en polarisation	43
	2.2.2.3 Mesures multidirectionnelles	44
	2.2.3 La mission PARASOL	45
	2.2.3.1 L'héritage de POLDER 1 et 2	45
	2.2.3.2 Synergie avec les satellites de l'A-Train	48
	2.3 Autres instruments satellitaires	48
	2.3.1 MODIS	48
	2.3.2 CALIOP	49
	2.3.3 CERES	49
	2.5.5 OEIGES	45
3	Télédétection des aérosols au-dessus des nuages	53
	3.1 État de l'art	53
	3.2 Détermination de la diffusion des aérosols à partir des luminances polarisées	
	3.2.1 Sensibilité de la mesure de luminance polarisée	55
	3.2.2 Méthode d'inversion	58
	3.2.3 Principaux résultats	62
	3.3 Restitution de l'absorption des aérosols à partir des luminances totales .	65
	3.3.1 Sensibilité de la luminance totale à l'absorption des aérosols	65
	3.3.2 Méthode d'inversion	67
	3.4 Étude de sensibilité	68
	3.4.1 Validité de l'algorithme	68
	3.4.2 Les effets 3D	72
	3.4.2.1 Simulation 3D des luminances	72
	3.4.2.2 Impact sur les propriétés des aérosols et des nuages restituées	
	3.4.2.3 Impact sur le forçage	74
	3.5 Cas d'étude	75
	3.5.1 Aérosols de feux de biomasse africaine	75
	3.5.2 Aérosols de feux de biomasse sibérienne	78
	3.5.3 Poussières minérales sahariennes	81
	3.6 Conclusions	83
	0.0 Colletusions	00
4	Effet direct des aérosols au-dessus des nuages	87
I	4.1 Les différentes approches	87
	111 1100 amoromoo approanos	\circ

Table des matières xi

Bi	bliographie	168
В	Absorption of aerosols above clouds from POLDER/PARASOL measurements and estimation of their direct radiative effect	149
\mathbf{A}	Propriétés et effet direct des aérosols au-dessus des nuages en 2006	143
	6.2.2 Premiers résultats au-dessus des nuages à l'échelle planétaire 6.2.3 Première synthèse et enjeux à venir	135 139
	6.2.1 Évolutions d'ordre méthodologique	133
	6.2 Perspectives et premiers résultats à l'échelle planétaire	133
	6.1 Conclusions générales sur ce travail	131
6	Conclusions et perspectives	131
	5.3.5 Conclusions	128
	5.3.4 Discussion	125
	5.3.3 Results	122
	5.3.2.2 AeroCom models and comparison methodology	120
	5.3.2.1 POLDER aerosol-above-cloud properties	119
	5.3.2 Data and method	110
	5.3 Comparaison des propriétés des aérosols au sud-est de l'océan Atlantique 5.3.1 Introduction	116 118
	5.2.3 Résultats	114
	5.2.2.4 Impact de la phase thermodynamique du nuage	112
	5.2.2.3 Impact de la résolution temporelle des sorties de modèles	111
	5.2.2.2 Choix du seuil sur la fraction nuageuse	109
	5.2.2.1 Définition d'un nuage dans les modèles	108
	5.2.2 Mise en place du protocole	107
	5.2.1.2 AeroCom	$100 \\ 107$
	5.2.1 Données	106
	5.2 Comparaison à l'échelle globale	106 106
	5.1 Le projet AeroCom	105
5	Comparaison POLDER/AeroCom des propriétés des aérosols	105
	1.0 Conclusions	100
	4.4.3 Poussieres minerales sanariennes	100
	4.4.2 Aérosols de feux de biomasse sibérienne	98 98
	4.4.1 Aérosols de feux de biomasse africaine	96
	4.4 Analyse des résultats	95
	4.3 Calcul précis	94
	4.2.2 Comparaison avec le calcul précis	90
	4.2.1 La méthode approchée	89
	4.2 Calcul approché de la perturbation	89

Chapitre 1

Introduction générale

1.1 Le changement climatique

1.1.1 Évolution globale et effets régionaux

Le réchauffement climatique est aujourd'hui une évidence soutenue par de nombreuses études, elles mêmes alimentées par des observations indépendantes. Les températures moyennes des trois dernières décennies sont les plus élevées mesurées depuis 1850, la première décennie du XXIème siècle étant la plus chaude jamais observées. L'IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change - ou GIEC), chargé d'expertiser l'information scientifique concernant le risque de changement climatique, estime une augmentation de 0.69 à 1.09°C entre 1901 et 2012 (Fig. 1.1a). Si l'on compare avec l'écart de 3 à 8°C nous séparant du dernier maximum glaciaire (il y a environ 21 000 ans - Planton et al., 2015), il apparaît que l'amplitude et la vitesse des changements que nous vivons sont sans précédent.

Les zones les plus froides de notre planète sont les premières touchées par le réchauffement. À l'échelle globale, nous observons une diminution de la glace de terre depuis une vingtaine d'années, notamment en Antarctique et au Groenland où la perte de masse de la glace a été six fois plus importante en 2011 qu'en 1992. La surface couverte au printemps par la glace de mer Arctique et par la neige dans l'hémisphère nord continue de décroître. L'affaiblissement de la cryosphère accentue l'une des rétroactions les plus importantes de notre système climatique. En effet, la fonte de la glace et de la neige laisse apparaître les surfaces continentales et océaniques sous-jacentes. Ces dernières, plus sombres, absorbent d'avantage d'énergie solaire, accélérant ainsi le réchauffement. L'expansion thermique des océans constitue l'une des premières causes de montée du niveau de la mer (élévation de 19 cm entre 1900 et 2010 - Fig. 1.1b). Avec la perte de

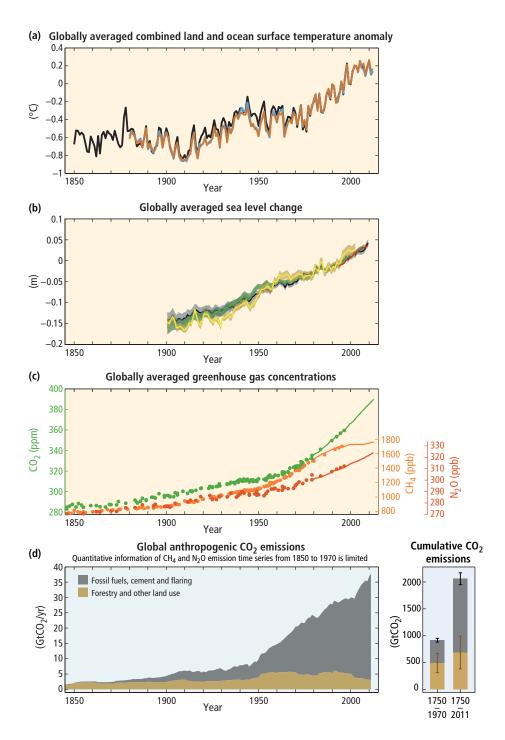


FIGURE 1.1 – Observations (a, b et c) et indicateurs (d) du changement climatique.(a) Moyenne annuelle et globale de l'anomalie de température de surface (terre et océan combiné). Les couleurs correspondent à différents jeux de données. (b) Moyenne annuelle et globale du changement de niveau de la mer. (c) Concentrations atmosphériques en gaz à effet de serre déterminées à partir des carottes de glaces (points) et par mesures directs (lignes). (d) Émissions globale de CO₂ anthropique. Source : IPCC, 2014.

masse des glaciers, des modifications du cycle de l'eau ont également été observées. Une hausse des précipitations aux-dessus des terres a notamment été recenséée après 1950 aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord ainsi qu'une augmentation de l'humidité après 1970. Enfin, le réchauffement a d'ores et déjà amplifié et multiplié les événements extrêmes tels que les précipitations intenses sur le continent nord américain et en Europe, la sécheresse en Méditerranée et en Afrique de l'Ouest et les cyclones tropicaux dans l'Atlantique Nord.

L'analyse des bulles d'air contenues dans les carottes de glace prélevées en Antarctique et au Groenland a permis aux paléoclimatologues de mettre en évidence le lien entre la concentration en dioxyde de carbone atmosphérique et la température de l'air de surface. Les observations récentes confirment cette corrélation alors même que la concentration en $\rm CO_2$ ne cesse d'augmenter depuis le début de l'ère industrielle (1750 - Fig. 1.1c). Les émissions anthropiques de gaz dit « à effet de serre » (tel que le $\rm CO_2$, le $\rm CH_4$ et le $\rm N_2O$) sont passées de 27 (± 3.2) à 49 (± 4.5) $\rm GtCO_2$ -éq/an entre 1970 et 2010 (Fig. 1.1d). Lorsqu'ils ne sont pas absorbés par les terres ou les océans (entraînant une acidification de ces derniers), ces gaz constituent une entrave à l'évacuation du rayonnement infrarouge émis par la Terre vers l'espace. Dans leur rapport de 2013, les scientifiques de l'IPCC qualifient le lien entre l'activité humaine et l'accroissement des températures d'extrêmement probable (certitude supérieure à 95%).

Tout comme les gaz à effet de serre, les aérosols influencent le bilan radiatif de la Terre. Leur rôle sur le climat est tout aussi décisif puisqu'ils contrebalancent en partie l'effet de serre. Toutefois, dans le bilan des facteurs du changement climatique, les aérosols consituent la plus grande source d'incertitudes.

1.1.2 Les aérosols atmosphériques

Les aérosols correspondent à l'ensemble des particules fines, liquides ou solides, en suspension dans l'atmosphère. Malgré leur petite taille (diamètre inférieur à $100\mu m$) et leur concentration modeste, leurs interactions avec le rayonnement solaire peut se traduire par des phénomènes remarquables, par exemple, une couche brunâtre au moment des pics de pollution (Fig. 1.2a) ou des panaches de fumées épaisses lors des feux de forêts (Fig. 1.2b). On distingue généralement les aérosols des gouttelettes d'eau et des cristaux de glace qui constituent les nuages. Bien qu'il s'agisse d'un composant mineur de l'atmosphère comparativement aux gaz, les aérosols affectent de façon significative le bilan radiatif terrestre.

D'un point de vue climatique, il est intéressant de classer les aérosols en fonction de leur origine. Parmi les aérosols d'origine naturelle, nous citerons les poussières désertiques et les embruns marins (dont le soulèvement est le résultat de l'érosion éolienne), les particules volcaniques (cendres et aérosols sulfatés) et les aérosols biogéniques (comme

les pollens). Les aérosols d'origine naturelle constituent près de 90% de la masse totale de particules émises (Satheesh et Krishna Moorthy, 2005). A l'inverse, les aérosols provenant des feux de biomasse sont majoritairement d'origine anthropique (défrichement des forêts et des savanes pour l'agriculture par exemple). Aussi, le chauffage domestique, l'industrie et le transport sont sources d'aérosols de pollution. Les aérosols émis par l'activité humaine sont généralement plus petits que ceux d'origine naturelle. De ce fait, ils ont un temps de résidence dans l'atmosphère plus long (de l'ordre de la dizaine de jours) et donc une action plus durable sur le climat.







pole Lilloise en avril 2014.

à juin 2007.

(a) Pic de pollution sur la métro-(b) Feux de forêt en Floride d'avril (c) Panache volcanique au-dessus du Pinatubo lors de son éruption

FIGURE 1.2 – Exemples visibles de fortes concentrations en aérosols.

Les aérosols étant majoritairement produits à la surface de la Terre, ils sont situés le plus abondamment dans les basses couches de la troposphère (en dessous de 3 km). Ils peuvent néanmoins atteindre des altitudes plus élevées selon l'intensité des processus d'injection et de la dynamique de leur transport. Les aérosols sont principalement lessivés par dépôt sec ou humide. Le processus de dépôt sec dépend de la taille des particules : les gros aérosols sont sujets à la sédimentation gravitationnelle alors que les aérosols de petites tailles sont éliminés par diffusion brownienne ¹. Le dépôt humide traduit, quand à lui, le lessivage des aérosols par la pluie et l'interception des aérosols par les gouttelettes d'eau des nuages. La répartition verticale des aérosols influence beaucoup leur durée de vie et donc, leur influence sur le climat : plus l'altitude des aérosols est élevée, moins ils sont exposés au dépôt humide. En juin 1991, le volcan Pinatubo situé aux Philippines est entré en éruption (Fig. 1.2c), émettant près de 20 millions de tonnes de SO₂ dans l'atmosphère (Robock, 2000). La stratosphère² s'est

¹Le processus de diffusion brownienne désigne les chocs des particules sur les molécules de gaz suite à leurs mouvements aléatoires causés par l'agitation thermique. Ces collisions peuvent finalement aboutir au dépôt des aérosols sur un obstacle ou une surface.

²La stratosphère est la deuxième couche de l'atmosphère terrestre après la troposphère. Le bas de la couche est située entre 10 et 20 km d'altitude et le sommet entre 40 et 60 km. La stratosphère est une couche stable au contraire de la troposphère, siège des phénomènes météorologiques comme les nuages et la pluie. Les aérosols atteignant la stratosphère ont ainsi une plus grande durée de vie puisqu'ils échappent au dépôt humide.

alors chargée en aérosols sulfatés qui y ont résidé pendant plus d'un an. En obstruant le passage du rayonnement solaire vers la surface, ces aérosols ont entrainé une baisse de la température au sol de 0.4°C en moyenne sur le globe (Dutton et Christy, 1992).

1.1.3 Le rôle des aérosols

L'influence des aérosols sur le climat s'exerce selon différents processus que l'on regroupe habituellement en trois catégories :

- L'effet direct désigne les interactions entre les aérosols et le rayonnement. Tout d'abord, les aérosols diffusent la lumière du soleil, la redistribuant dans toutes les directions. Une partie est donc renvoyée vers le haut. Vue de l'espace, la planète appparaît plus réfléchissante en présence d'aérosols, entrainant un refroidissement du climat. De plus, il y a moins de rayonnement qui parvient à la surface, ce qui a pour effet de refroidir les basses couches de l'atmosphère : c'est « l'effet parasol ». Certains aérosols absorbent également la lumière. Au-dessus de surfaces réfléchissantes, ils agissent comme un voile assombrissant, donnant lieu à un réchauffement du climat.
- L'effet semi-direct correspond à l'impact des aérosols sur la dynamique atmosphérique. En absorbant le rayonnement, les aérosols échauffent la couche d'atmosphère qui les contient, modifiant les profils verticaux de température et d'humidité. De cette façon, ils influent sur les conditions de formation des nuages, facilitant leur développement ou entrainant leur disparition selon les cas.
- L'effet indirect des aérosols résulte de leurs interactions avec les nuages. Les gouttelettes d'eau et les cristaux de glace des nuages se forment autour des aérosols. La quantité d'aérosols et leurs propriétés physico-chimiques ont ainsi un impact sur les proprités physiques des nuages, leur durée de vie et les pluies.

Les mécanismes et les impacts radiatifs de ces effets seront détaillés dans le paragraphe 1.3. Enfin, notons que, lorsque les aérosols très absorbants (comme la suie) se déposent sur la neige, ils absorbent l'énergie du rayonnement solaire, augmentant la température de la surface et accélérant la fonte de ces surfaces enneigées.

La quantification de l'impact des aérosols est une tâche complexe. De part leur courte durée de vie et la distribution hétérogène des sources, la distribution des aérosols est caractérisée par une variabilité spatiale et temporelle importante. Les différents processus de formation et les réactions chimiques qu'ils subissent pendant leur transport sont à l'origine de la grande diversité de leurs propriétés physico-chimiques contrôlant les interactions avec le rayonnement et les nuages. Tous les 5 ans, l'IPCC fournit une évaluation détaillée des effets radiatifs moteurs du changement climatique. Ces résultats

sont présentés en terme de forçage radiatif (W.m⁻²), une grandeur physique définie comme la différence des flux radiatifs entre un système de référence et le même système intégrant l'agent perturbateur étudié. Le calcul des forçages radiatifs anthropiques s'appuie sur des simulations obtenues à partir de modèles numériques. Ces modèles sont des systèmes mathématiques intégrant les équations qui régissent les lois de la physique et de la chimie, dans le but de reproduire, le plus fidèlement possible, le système climatique.

La figure 1.3 présente le bilan des forçages radiatifs et des erreurs associées issu du rapport de l'IPCC de 2013. Ces 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 plus limitée. Les aérosols sont globalement associés à des effets de refroidissement (forçage radiatif négatif), contrebalançant en partie l'impact des gaz à effet de serre : le forçage radiatif effectif³ dû aux interactions aérosols-radiations est estimé à -0.45 W.m⁻² $[-0.95 \ \text{à} + 0.05] \ \text{et vaut} \ -0.45 \ \text{W.m}^{-2} \ [-1.2 \ \text{à} \ 0.0] \ \text{pour les interactions aérosols-nuages},$ contre +2.83 W.m⁻² [2.26 à 3.40] pour les gaz à effet de serre. Comparativement au rapport de l'IPCC de 2007, l'amplitude du forçage des aérosols a été revue à la baisse. Cette diminution vient de la prise en compte de nouveaux processus sur les interactions des aérosols avec les nuages dans les modèles (tel que l'effet des aérosols sur les nuages de phase mixte, sur les nuages convectifs et sur le rayonnement aux hautes longueurs d'onde). Cependant, les barres d'incertitudes demeurent aussi élevées qu'en 2007. Sur la figure 1.3, on constate que les aérosols dominent l'incertitude sur le forçage anthropique total, cette incertitude étant du même ordre de grandeur que le forçage des aérosols lui même.

L'amélioration de notre compréhension des aérosols et de leurs effets est d'une importance primordiale pour estimer le changement climatique présent et futur. La diminution des incertitudes sur l'impact des aérosols requiert une meilleure modélisation de ces particules et de leurs mécanismes d'interactions. L'enjeu est donc d'apporter aux modèles climatiques de nouvelles contraintes sur les aérosols, en s'appuyant notamment sur des observations et de la production de variables innovantes. Dans la suite de ce chapitre, nous spécifierons les processus physiques qui régissent les interactions aérosol-rayonnement-nuage et nous soulignerons l'originalité et l'intérêt particulier de la télédétection des aérosols au-dessus des nuages.

³Pour 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 concept du forçage radiatif effectif est légèrement différent puisque son calcul prend en compte les ajustements de l'atmosphère et de la surface entre les deux systèmes. Ainsi, le forçage radiatif effectif est un meilleur indicateur des éventuelles réponses en température.

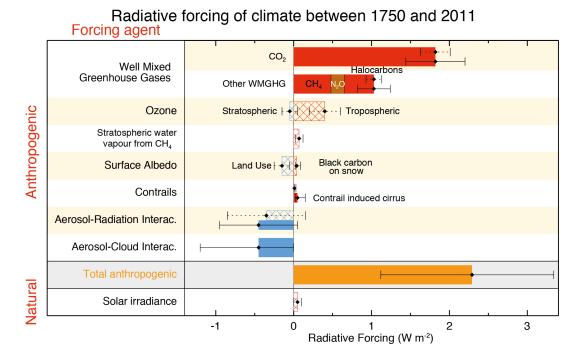


FIGURE 1.3 – Estimations du forçage radiatif anthropique en 2011 par rapport à 1750 et incertitudes associées concernant les principaux facteurs de changement climatique. Les barres hachurées et les traits pointillés correspondent aux forçages radiatifs et les barres et traits pleins sont pour les forçages radiatifs effectifs. Source: Myhre et al., 2013b.

1.2 Caractérisation du rayonnement, des aérosols et des nuages

Avant d'entrer en détails dans l'explication des effets climatiques des aérosols, il est nécessaire d'introduire un certain nombre de concepts physiques. La section ci-dessous est donc consacrée aux définitions des grandeurs relatives au rayonnement, aux aérosols et aux nuages.

1.2.1 Grandeurs radiatives

1.2.1.1 Paramètre de Stokes

La lumière peut-être décrite comme une superposition d'ondes électromagnétiques planes et monochromatiques. Chacune de ces ondes est représentée par un champ électrique \vec{E} et un champ magnétique orthogonal \vec{B} oscillant à la même fréquence. Les

équations de Maxwell permettent de déduire le champ magnétique à partir du champ électrique. De cette façon, la description de l'oscillation du champ électrique \vec{E} suffit à caractériser une onde. On exprime le vecteur de champ électrique complexe avec la relation suivante :

$$\vec{E}(\vec{r},t) = E_0 e^{i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})} \tag{1.1}$$

où \vec{r} est la position du vecteur au point d'observation, t correspond au temps, E_0 est l'amplitude, ω est la pulsation et \vec{k} désigne la direction de propagation de l'onde. Dans le plan d'onde (plan normal à \vec{k}), on décompose le vecteur \vec{E} selon 2 vecteurs : une composante parallèle \vec{E}_l et perpendiculaire \vec{E}_r au plan de référence (Fig. 1.4) définies par :

$$\vec{E}_l = E_{l0}e^{i(\omega t - kz - \phi_l)}$$

$$\vec{E}_r = E_{r0}e^{i(\omega t - kz - \phi_r)}$$
(1.2)

avec E_{l0} et E_{r0} , les amplitudes des composantes parallèle et perpendiculaire du champ et ϕ_l et ϕ_r , leur phase respective. On définit le retard de phase entre les deux composantes $\delta = \phi_l - \phi_r$.

Dans le cas général, l'extrémité du vecteur champ électrique \vec{E} décrit une ellipse dans le plan d'onde. Cette trajectoire caractérise l'état de polarisation de l'onde. Dans la base (\vec{l}, \vec{r}) , on définit cette ellipse par l'angle χ indiquant la direction de son grand angle et son ellipticité β (Fig. 1.5). Lorsque les deux composantes sont en phase $(\delta = 0)$, l'ellipse se réduit à un segment. Un autre cas particulier est obtenu pour $\delta = \pm \pi/2$ et $E_{l0} = E_{r0}$ qui correspond à une trajectoire circulaire. On parle respectivement de polarisation elliptique, circulaire et rectiligne.

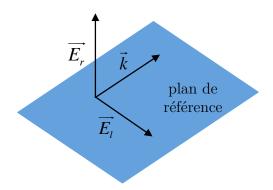


FIGURE 1.4 – Vecteurs composant le champ électrique. Le plan de référence contient les vecteurs \vec{k} et $\vec{E_r}$ et le plan d'onde, les vecteurs $\vec{E_r}$ et $\vec{E_l}$.

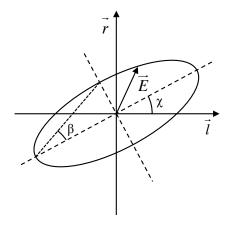


FIGURE 1.5 – Représentation d'une polarisation elliptique dans la base (\vec{l}, \vec{r}) .

En 1852, Georges Gabriel Stokes introduit un formalise pour décrire les ondes électromagnétiques et plus particulièrement, leur état de polarisation. Le vecteur de Stokes est un ensemble de 4 paramètres : I, qui décrit l'intensité totale de l'onde, Q

et U, l'état de polarisation linéaire et V, l'état de polarisation circulaire. Dans le plan de diffusion (\vec{l}, \vec{r}) , on les exprime à partir des moyennes temporelles suivantes (Stokes, 1852; Chandrasekhar, 1950):

$$\begin{pmatrix}
I \\
Q \\
U \\
V
\end{pmatrix}_{(\vec{l},\vec{r})} = \begin{pmatrix}
\overline{E_l E_l^* + E_r E_r^*} \\
\overline{E_l E_l^* - E_r E_r^*} \\
\overline{E_l E_r^* + E_r E_l^*} \\
\overline{i E_l E_r^* - i E_r E_l^*}
\end{pmatrix}_{(\vec{l},\vec{r})} = \begin{pmatrix}
\overline{E_{l0}^2 + E_{r0}^2} \\
\overline{E_{l0}^2 - E_{r0}^2} \\
\overline{2E_{l0} E_{r0} cos \delta} \\
\overline{2E_{l0} E_{r0} sin \delta}
\end{pmatrix}_{(\vec{l},\vec{r})}$$
(1.3)

où les astérisques désignent les complexes conjugués. Les paramètres de Stokes sont reliés aux paramètres de l'ellipse par les relations suivantes :

$$tan(2\chi) = U/Q \tag{1.4}$$

$$tan(2\beta) = V/\sqrt{Q^2 + U^2} \tag{1.5}$$

Pour un rayonnement purement monochromatique et cohérent, l'onde est totalement polarisée et les paramètres de Stokes vérifient la relation :

$$I^2 = Q^2 + U^2 + V^2 (1.6)$$

Ce n'est pas le cas du rayonnement naturel, comme le rayonnement solaire arrivant au sommet de l'atmosphère, qui n'est pas polarisé : le champ \vec{E} tourne de façon aléatoire et désordonné ($E_{lo} = E_{ro}$ et les moyennes temporelles de $sin\delta$ et $cos\delta$ sont nulles). Au fur et à mesure de ses interactions avec l'atmosphère, le rayonnement se polarise. Le vecteur de Stokes s'exprime alors comme une moyenne temporelle de l'équation (1.3) et l'équation précédente devient :

$$Q^2 + U^2 + V^2 = I_p^2 \le I^2 (1.7)$$

avec:

$$I = I_{nat} + I_p \tag{1.8}$$

où I_p et I_{nat} sont les composantes polarisée et naturelle du rayonnement. On utilise également le taux de polarisation P, défini par :

$$P = \frac{I_p}{I} = \frac{\sqrt{Q^2 + U^2 + V^2}}{I} \tag{1.9}$$

D'après Kawata (1978), la polarisation circulaire générée par les interactions du rayonnement avec l'atmosphère est très faible (l'ordre de grandeur de V/I est de 10^{-4}).

Dans les applications, nous nous intéresserons donc uniquement à la caractérisation de l'intensité et de l'état de polarisation linéraire du rayonnement.

Notons que le vecteur de Stokes est défini par rapport au plan de référence contenant la direction de propagation du rayonnement. En cas de changement de base par rotation anti-horaire d'angle α autour de la direction de propagation, la matrice de rotation $T(\alpha)$ permet de reprojetter les paramètres de Stokes :

$$\begin{pmatrix} I' \\ Q' \\ U' \\ V' \end{pmatrix}_{(\vec{l'}, \vec{r'})} = T(\alpha) \begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix}_{(\vec{l}, \vec{r})} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos 2\alpha & \sin 2\alpha & 0 \\ 0 & -\sin 2\alpha & \cos 2\alpha & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix}_{(\vec{l}, \vec{r})}$$
 (1.10)

1.2.1.2 Luminance normalisée et réflectance

La luminance est une grandeur fondamentale en télédétection. Elle décrit le rayonnement réfléchi et diffusé pour une géométrie d'éclairement et d'observation donnée. Cette direction est caractérisée par l'angle solaire θ_s , l'angle de visée θ_v et l'azimut relatif φ_r qui est la différence entre l'azimut de visée φ_v et l'azimut solaire φ_s (Fig. 1.6).

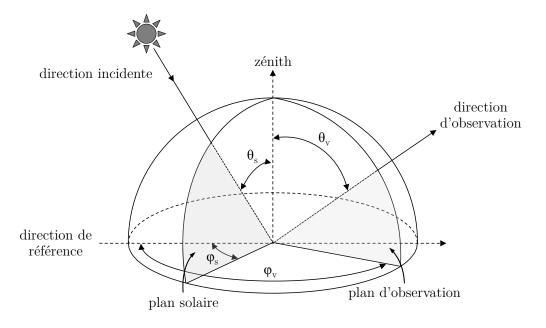


FIGURE 1.6 – Définition de la géométrie d'éclairement et d'observation.

La luminance L^* est une quantité monochromatique égale à la puissance lumineuse émise ou diffusée dans un angle solide élémentaire par unité de surface apparente. Elle s'exprime en W.m⁻².sr⁻¹. μ m⁻¹. En télédétection, on lui préfère souvent la luminance

normalisée L (sans unité) :

$$L(\theta_s, \theta_v, \phi_r) = \frac{\pi L^*(\theta_s, \theta_v, \varphi_r)}{E_s}$$
(1.11)

où E_s est l'éclairement solaire hors atmosphère exprimé en W.m⁻².sr⁻¹. μ m⁻¹. La luminance totale L est proportionelle au premier paramètre de Stokes I. Elle somme donc les contributions naturelle et polarisée du rayonnement ($L = L_{nat} + L_p$). La luminance polarisée L_p se déduit de Q et U selon la relation suivante :

$$L_p = \sqrt{Q^2 + U^2} (1.12)$$

Dans la suite de notre étude, nous utiliserons des luminances polarisées signées. Lorsque le champ électrique de l'onde polarisée est perpendiculaire au plan de diffusion, la luminance polarisée L_p est choisie positive. Elle devient négative pour une onde polarisée parallèlement au plan de diffusion.

La réflectance bi directionnelle r définit la fraction de rayonnement réfléchie sous un éclairement incident directionnel :

$$r(\theta_s, \theta_v, \varphi_r) = \frac{L(\theta_s, \theta_v, \varphi_r)}{\cos\theta_s} = \frac{\pi L^*(\theta_s, \theta_v, \varphi_r)}{E_s \cos\theta_s}$$
(1.13)

1.2.1.3 Flux et albédo

Le flux radiatif F, appelé aussi éclairement, désigne une quantité d'énergie radiative reçue par unité de surface et de temps et s'exprime en W.m⁻². Le flux net se calcule alors en intégrant la luminance L^* sur toutes les directions θ_v :

$$F(\theta_s) = \int_{4\pi} L^* \cos \theta_v d^2 \omega \tag{1.14}$$

où $d^2\omega$ est l'angle solide élémentaire. Notons ici que la luminance désigne la quantité intégrée spectralement. On décompose le flux net en 2 flux intégrés sur des demi-espaces : le flux montant F^{\uparrow} et flux descendant F^{\downarrow} .

$$F = F^{\uparrow} - F^{\downarrow} \tag{1.15}$$

L'albédo plan ρ_p caractérise le pouvoir réfléchissant d'une surface. Il est compris entre 0 et 1 et s'écrit selon l'équation suivante :

$$\rho_p(\theta_s) = \frac{F_{r\acute{e}fl\acute{e}chi}}{F_{incident}} = \frac{F^{\uparrow}}{F^{\downarrow}}$$
 (1.16)

Au sommet de l'atmosphère, le flux incident est égal à $E_s cos\theta_s$. Lorsque la luminance est isotrope (indépendante de θ_v et φ_v), le flux réfléchi s'écrit $F_{réfléchi} = \pi L^*$. Il en résulte que la réflectance bidirectionnelle est aussi isotrope et égale à l'albédo plan. Dans ce cas, on parle de réflecteur lambertien.

On définit enfin l'albédo sphérique ρ par intégration de l'albédo plan sur toutes les direction d'incidence solaire :

$$\rho = 2 \int_{0}^{1} \mu_s \rho_p(\mu_s) d\mu_s \tag{1.17}$$

où μ_s est le cosinus de l'angle solaire.

1.2.2 Propriétés optiques des particules

Dans cette section, le terme « particule » désignera de façon générique les molécules de gaz, les aérosols ainsi que les gouttelettes d'eau et les cristaux de glace des nuages. Aussi, et sauf mention contraire, les propriétés optiques définies ci-dessous dépendent de la longueur d'onde λ . Pour des raisons de clarté, l'indice λ a été omis.

1.2.2.1 Extinction

Épaisseur optique

Au cours de sa propagation dans le milieu atmosphérique, le rayonnement interagit avec les particules et sa puissance radiative s'atténue : c'est le phénomène d'extinction. Soit une couche atmosphérique d'épaisseur infinitésimale ds et composée de particules sphériques ou non-sphériques orientés aléatoirement. En traversant cette couche, un rayonnement incident d'intensité I (W.m⁻²) ressort avec une intensité I+dI que l'on exprime avec la relation suivante (Fig. 1.7) :

$$dI = -\sigma_e I ds \tag{1.18}$$

où σ_e est le coefficient d'extinction (m⁻¹). On appelle transmittance le rapport I/I_0 (sans unité).

En intégrant sur une couche d'épaisseur finie comprise entre s_1 et s_2 (Fig 1.7), on retrouve la loi de Beer-Lambert :

$$I(s_2) = I(s_1)e^{-\tau_e} (1.19)$$

avec:

$$\tau_e = \int_{s_1}^{s_2} \sigma_e(s) ds \tag{1.20}$$

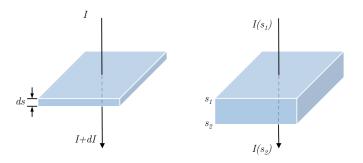


FIGURE 1.7 – Définition de l'extinction.

où τ_e est l'épaisseur optique d'extinction (sans unité). Deux mécanismes contribuent au phénomène d'extinction : l'absorption et la diffusion. Ainsi, le coefficient d'extinction est la somme du coefficient d'absorption σ_a et du coefficient de diffusion σ_s . On exprime, de manière analogue, l'épaisseur optique d'extinction comme la somme des épaisseurs optiques d'absorption, τ_a , et de diffusion, τ_s .

$$\sigma_e = \sigma_a + \sigma_s$$
 et $\tau_e = \tau_a + \tau_s$ (1.21)

Exposant d'Angström

L'exposant d'Angström α exprime la dépendance spectrale de l'épaisseur optique τ_e et est défini par la relation suivante :

$$\frac{\tau_{e,\lambda}}{\tau_{e,\lambda_0}} = \left(\frac{\lambda}{\lambda_0}\right)^{-\alpha} \tag{1.22}$$

Qualitativement, α diminue lorsque la taille des particules augmente. Ainsi, les molécules présentent un exposant d'Angström de 4, alors que celui des gouttelettes d'eau des nuages est de l'ordre de 0 (pas de variation spectrale, les nuages sont plutôt blancs).

Albédo de simple diffusion

L'albédo de simple diffusion ϖ_0 caractérise l'efficacité des processus de diffusion du rayonnement par les particules par rapport à l'absorption :

$$\varpi_0 = \frac{\sigma_s}{\sigma_e} = \frac{\sigma_s}{\sigma_a + \sigma_s} = 1 - \frac{\sigma_a}{\sigma_e} \tag{1.23}$$

Ainsi, $\varpi_0 = 1$ correspond à une particule purement diffusante. La valeur de l'albédo de simple diffusion dépend notamment de l'indice de réfraction de la particule (et en particulier de sa partie imaginaire) à la longueur d'onde donnée, et, par extension, de sa composition chimique.

1.2.2.2 Diffusion

Matrice de diffusion

Lorsque que le rayonnement est diffusé par une particule, il est dévié dans toutes les directions de manière anisotrope. La matrice de diffusion \tilde{F} est la matrice 4x4 décrivant la modification du champ électrique au cours de l'interaction avec la particule diffusante.

$$\begin{pmatrix}
I_s \\
Q_s \\
U_s \\
V_s
\end{pmatrix} = \begin{pmatrix}
F_{11} & F_{12} & F_{13} & F_{14} \\
F_{21} & F_{22} & F_{23} & F_{24} \\
F_{31} & F_{32} & F_{33} & F_{34} \\
F_{41} & F_{42} & F_{43} & F_{44}
\end{pmatrix} \begin{pmatrix}
I_0 \\
Q_0 \\
U_0 \\
V_0
\end{pmatrix}$$
(1.24)

où les indices 0 et s désignent respectivement les rayonnements incident et diffusé, chacun défini dans son plan de référence.

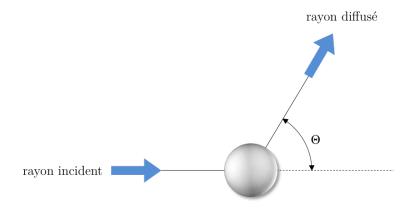


FIGURE 1.8 – Représentation de l'angle de diffusion.

L'angle formé par la direction d'incidence et le rayon diffusé est appelé angle de diffusion (Fig. 1.8). Il se note Θ et sa valeur est comprise entre 0 et π . Lorsque le milieux diffusant est composé de particules présentant un axe de symétrie et orientées façon aléotoire et/ou d'un groupes de particules orientées aléatoirement avec un nombre égal de particules qui sont l'image miroir l'une de l'autre, la matrice de diffusion présente une symétrie azimuthale. Dans ce cas, elle s'exprime en fonction de l'angle de diffusion Θ et n'est composée que de 6 éléments indépendants. Elle devient alors :

$$\widetilde{F}(\Theta) = \begin{pmatrix}
F_{11}(\Theta) & F_{12}(\Theta) & 0 & 0 \\
F_{12}(\Theta) & F_{22}(\Theta) & 0 & 0 \\
0 & 0 & F_{33}(\Theta) & F_{34}(\Theta) \\
0 & 0 & -F_{34}(\Theta) & F_{44}(\Theta)
\end{pmatrix}$$
(1.25)

Lorsque les diffuseurs sont sphériques, des simplifications supplémentaires peuvent être faites :

$$F_{11}(\Theta) = F_{22}(\Theta)$$
 $F_{33}(\Theta) = F_{44}(\Theta)$ $F_{11}(0) = F_{33}(0)$ (1.26)

Fonction de phase

Le premier élément de la matrice de diffusion, F_{11} , est également appelé fonction de phase, p. Lorsque le rayonnement incident n'est pas polarisé, la fonction de phase peut être interprétée comme la fonction de probabilité que le rayonnement soit diffusé dans la direction Θ . La conservation de l'énergie implique que son intégrale sur toutes les directions de diffusion soit égale à 4π :

$$\int_{4\pi} p(\Theta)d\Omega = 4\pi \tag{1.27}$$

où Ω est l'angle solide autour de la direction Θ .

L'élément F_{12} de la matrice de diffusion caractérise, quand à lui, la distribution angulaire du rayonnement diffusé polarisé linéairement. On l'appelle aussi fonction de phase polarisée, notée q.

Facteur d'asymétrie

Afin d'interpréter plus facilement la fonction de phase, on utilise le facteur d'asymétrie g qui quantifie le sens de la diffusion. Il est défini comme la moyenne pondérée du cosinus l'angle de diffusion :

$$g = \langle \cos\Theta \rangle = \frac{\int_{-1}^{+1} p(\Theta) \cos\Theta d(\cos\Theta)}{\int_{-1}^{+1} p(\Theta) d(\cos\Theta)}$$
(1.28)

Lorsque g est positif, la diffusion se fait majoritairement vers l'avant (Θ compris entre 0 et $\pi/2$), g=1 correspondant au cas d'une diffusion totale vers l'avant. Inversement, g est négatif pour une diffusion majoritairement vers l'arrière (Θ compris entre $\pi/2$ et $\pi/2$ et égal à -1 dans le cas d'une rétrodiffusion totale. Pour une diffusion symétrique entre l'avant et l'arrière (comme pour la diffusion isotrope ou moléculaire), le facteur d'asymétrie est nul.

Paramètre de taille

Il existe plusieurs régimes pour décrire les mécanismes de diffusion basés sur différents modèles asymptotiques et approximations. Afin de classer ces différentes solutions, on utilise le paramètre de taille (ou paramètre de Mie), noté x dans notre travail, qui

quantifie le rapport entre la taille des particules et la longueur d'onde λ du rayonnement considéré :

 $x = \frac{2\pi r}{\lambda} \tag{1.29}$

où r est le rayon de la particule. Pour les diffuseurs sphériques, on distingue 3 domaines de diffusion selon la valeur de $\mathbf x$:

 $-x \ll 1$: la diffusion Rayleigh,

 $-x \simeq 1$: la diffusion de Mie,

 $-x \gg 1$: la diffusion selon les lois de l'optique géométrique.

Diffusion Rayleigh

La diffusion Rayleigh est un cas limite de la théorie de Mie. Elle s'applique aux particules dont la taille est très inférieure à la longueur d'onde, ce qui est typiquement le cas des molécules de gaz pour le rayonnement visible. Les fonctions de phase s'écrivent alors (Hansen et Travis, 1974) :

$$p(\Theta) = \Delta \frac{3}{4} (1 + \cos^2 \Theta) + (1 - \Delta)$$

$$q(\Theta) = \Delta \frac{3}{4} (1 - \cos^2 \Theta)$$

$$\Delta = \frac{1 - \delta}{1 + \delta/2}$$
(1.30)

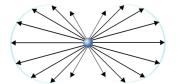
où δ est le facteur de dépolarisation, défini comme le rapport des intensités parallèle et perpendiculaire au plan de diffusion I_l/I_r pour $\Theta = 90^\circ$. Il permet de corriger l'effet de dépolarisation sur la diffusion par des molécules anisotropes. Pour l'atmosphère, δ vaut environ 0.03 (Kasten, 1968; A. T. Young, 1980).

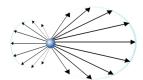
Au premier ordre, l'épaisseur optique moléculaire de diffusion $\tau_{s,mol}$ est inversement proportionnelle à λ^4 . Autrement dit, la diffusion Rayleigh est plus efficace aux longueurs d'onde les plus courtes du spectre. C'est ce mécanisme qui est à l'origine de la couleur bleue du ciel : le rayonnement bleu, qui a une longueur d'onde environ 2 fois plus petite que le rouge, est diffusé environ 16 fois plus. À l'aube et au couché du soleil, la lumière parcourt une plus grande distance dans l'atmosphère. Le bleu est totalement diffusé et on ne voit plus que les plus grandes longueurs d'onde : le ciel apparaît orangé.

Diffusion de Mie

Lorsque la taille des particules est de l'ordre de la longueur d'onde du rayonnement,

la théorie de la diffusion Rayleigh n'est plus valide. Une solution exacte de la théorie de Mie peut être trouvée dans le cas de particules sphériques homogène. Pour une taille et un indice de réfraction donnés, la théorie de Mie permet de calculer les coefficients σ_e , σ_a et σ_s , l'albédo de simple diffusion, la matrice de phase et le paramètre d'asymétrie. Dans le domaine visible, la théorie de Mie s'applique aux aérosols sphériques et aux gouttelettes d'eau des nuages.





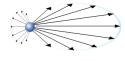


FIGURE 1.9 – De gauche à droite : la longueur des flêches indique l'intensité de la diffusion Rayleigh, de la diffusion de Mie pour de petites particules et de la diffusion de Mie pour de grosses particules, en fonction de la direction. L'onde incidente arrive par la gauche.

Diffusion selon les lois de l'optique géométrique

Pour des particules dont la taille est beaucoup plus grande que la longueur d'onde, les lois de l'optique géométrique suffisent à décrire, avec une assez bonne précision, le processus de diffusion. Par exemple, en appliquant les lois de Snell-Descartes pour un rayonnement traversant des dioptres sphériques, on parvient à expliquer l'arc-en-ciel provenant de la diffusion de la lumière par les gouttes d'eau ou des gouttelettes de tailles importantes.

Diffusion par les particules non-sphériques

Alors qu'il est toujours possible d'appliquer la diffusion Rayleigh pour les particules non-sphériques de très petites tailles et les lois de l'optique géométrique aux plus grosses, la théorie de Mie n'est pas valable pour les particules non-sphériques de tailles intermédiaires. Dans ce cas, les propriétés optiques de ces particules peuvent être soit mesurées expérimentalement (Volten et al., 2001), soit calculées par des méthodes de résolution avancées des lois de l'électromagnétisme. Par exemple, la méthode de T-matrix (Mishchenko et al., 1996) permet un calcul assez rapide lorsque les particules présentent une symétrie de révolution (Fig. 1.10).

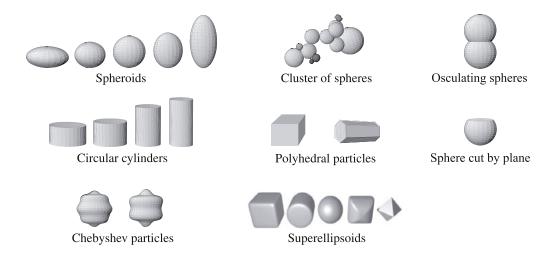


FIGURE 1.10 – Types de particules qui peuvent être traités par la méthode de T-matrix. Source : Lenoble et al., 2013.

1.2.3 Propriétés microphysiques des aérosols

1.2.3.1 Distribution en taille

Comme nous l'avons vu précédemment, la connaissance de la taille des aérosols est primordiale pour décrire leurs interactions avec le rayonnement. Si, en laboratoire, il est possible de produire des échantillons composés d'aérosols de taille unique (monodispersés), les aérosols sont présents dans l'atmosphère sous forme d'ensembles polydispersés (constitués de particules de tailles différentes). Pour caractériser les propriétés d'absorption et de diffusion de ces collections de particules, il est nécessaire de préciser leur distribution en taille ou granulométrie. Pour décrire mathématiquement la distribution en taille des aérosols, on utilise généralement une loi log-normale :

$$n(r) = \frac{dN}{dr} = \frac{N}{r\sigma\sqrt{2\pi}}exp\left[-\frac{\ln^2 r/r_g}{2\sigma^2}\right]$$
 (1.31)

où $n(r)(\mu \text{m}^{-3})$ est le nombre de particules dont le rayon est compris r et r+dr, N est le nombre total de particules, r_g est le rayon granulométrique et σ correspond à l'écart-type de la distribution en taille. Lorsque la distribution en taille des aérosols est multimodale, elle peut être modélisée par la combinaison de plusieurs log-normales :

$$n(r) = \sum_{i=1}^{k} \frac{N_i}{r\sigma_i \sqrt{2\pi}} exp\left[-\frac{\ln^2 r/r_{g,i}}{2\sigma_i^2}\right]$$
(1.32)

On définit également le rayon effectif r_{eff} et la variance effective v_{eff} à partir des relations suivantes :

$$r_{eff} = \frac{\int_{0}^{\infty} r^3 n(r) dr}{\int_{0}^{\infty} r^2 n(r) dr} \qquad \text{et} \qquad v_{eff} = \frac{\int_{0}^{\infty} (r - r_{eff})^2 r^2 n(r) dr}{r_{eff}^2 \int_{0}^{\infty} r^2 n(r) dr}$$
(1.33)

La taille des aérosols varie sur plusieurs ordres de grandeurs allant de $10^{-3}\mu m$ de rayon (aérosols composés de quelques molécules) à plusieurs dizaines de micromètres. On distingue ainsi les aérosols du mode fin, dont le rayon r est inférieur à $1\mu m$, des aérosols du mode grossier $(r>1\mu m)$. Au sein du mode fin, le mode de nucléation désigne les aérosols dont le rayon est inférieur à $0.01\mu m$, le mode d'Aitken celui pour lequel $0.01\mu m < r < 0.1\mu m$ et $0.1\mu m < r < 1\mu m$ correspond au mode d'accumulation. Compte tenu du large domaine de valeurs couvert par les rayons des aérosols, la distribution en taille est souvent donnée sur une échelle logarithmique. Dans ce cas, $n(\ln n) = r.n(r)$. En fonction des applications, on utilisera la distribution en nombre, en surface $s(\ln r)$ ou en volume $v(\ln r)$:

$$s(\ln r) = \pi r^2 n(\ln r)$$
 et $v(\ln r) = \frac{4\pi}{3} r^3 n(\ln r)$ (1.34)

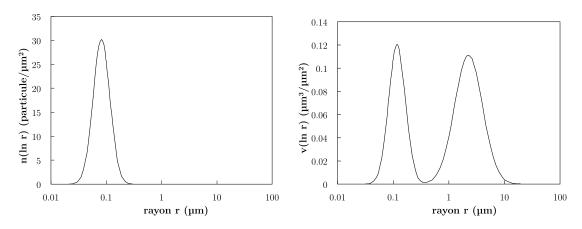


FIGURE 1.11 – Distribution en taille des aérosols à Dakar le 4 décembre 2005 resitutée à partir de mesures du photomètre AERONET, représenté en nombre (à gauche) et en volume (à droite). Comme les particules du mode grossier contribuent faiblement au nombre mais fortement au volume, la représentation volumique révèle une distribution bimodale. La présence de deux modes, centrés à $0.12\mu m$ et à $2.3\mu m$, est due au mélange d'aérosols de feux de biomasse et de poussières désertiques, fréquemment observé en hiver (Mortier, 2013).

1.2.3.2 Indice de réfraction

L'indice de réfraction n joue un rôle important, tant sur la diffusion du rayonnement que sur son absorption. Il est décrit par un nombre complexe dont la partie réelle m contribue à caractériser le processus de diffusion et la partie imaginaire k est reliée au phénomène d'absorption :

$$n = m - i.k \tag{1.35}$$

n dépend essentiellement de la composition chimique des particules et varie avec la longueur d'onde. Le carbone noir, dont la partie imaginaire k est d'environ 0.8 dans le visible (Bond et Bergstrom, 2006), entre dans la composition des aérosols issus de combustion, expliquant leur faible albédo de simple diffusion ($\varpi_0 < 0.9$). Au contraire, k est quasi nul pour les embruns marins, constitués de sels minéraux et d'eau, et qui ont donc un albédo de simple diffusion proche de 1. Quand à la partie réelle, elle est généralement comprise entre 1.40 et 1.55 (Dubovik et al., 2002). Les transformations des aérosols pendant leur transport affectent l'indice de réfraction. Notamment, le phénomène d'hygroscopicité (augmentation de la taille des aérosols par incorporation de la vapeur d'eau ambiante) entraîne une diminution de la partie réelle m, celle de l'eau étant plus basse ($m_{eau} = 1.33$ - Tab. 1.1).

	Aérosol sec		Aérosol humide	
	m	k	m	k
Sulfate	1.53	0.005	1.35-1.45	0.002
Carbone noir	1.95	0.79		
POM	1.53	0.006	1.35 - 1.45	0.003
Poussière minérale	1.53	0.008	1.48	0.005
Embrun marin	1.50	0.000	1.35-1.45	0.000

Table 1.1 – Valeurs typiques d'indices de réfraction complexes à 550 nm. POM désigne les Particules de Matières Organiques. Source : Bond et Bergstrom, 2006; Lenoble et al., 2013.

1.2.3.3 Morphologie

Il existe une grande variabilité de formes d'aérosols. À l'inverse des particules liquides, généralement assimilées à des sphères, les aérosols solides présentent des morphologies complexes (Fig. 1.12), fonction à la fois de la nature du matériau qui les constitue et du processus qui les a engendrés.

Une modélisation plus réaliste de l'aérosol s'appuie sur le modèle sphéroïde, défini comme la forme obtenue par rotation dans l'espace d'une ellipse autour de l'un de ses

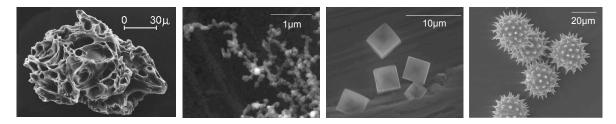


FIGURE 1.12 – Échantillons d'aérosols vue par microscopie à balayage électronique d'aérosols. De gauche à droite : cendre volcanique, agrégats de suie, embruns marins et grains de pollen. Source : UMBC, LASIR, Dartmouth College.

axes (Fig. 1.13). Elle est alors caractérisée par son rapport d'aspect $\varepsilon=a/b$ où a et b sont les longueurs des demi-axes parallèle et perpendiculaire à l'axe de rotation. La sphéroïde est qualifiée d'oblate lorsqu'elle est aplatie ($\varepsilon<1$) et de prolate lorsqu'elle est allongée ($\varepsilon>1$). Leur symétrie de révolution autorise l'usage de la méthode T-matrix pour le calcule de leur matrice de diffusion (Fig. 1.14). Des travaux ont montré que les mélanges polydispersés de sphéroïdes orientées aléatoirement permettaient de reproduire quantitativement les fonctions de phases des aérosols non-sphériques mesurées en laboratoire (Dubovik et al., 2006).

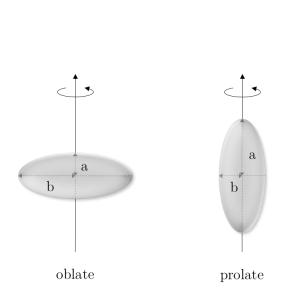


FIGURE 1.13 – Sphéroïdes oblate et prolate.

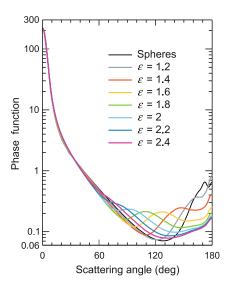


FIGURE 1.14 – Élément F_{11} de la matrice de diffusion calculé à 443 nm à partir de la méthode T-matrix. Les particules de tailles micrométriques ont un indice de réfraction de 1.53 + i0.008. Les traits colorés correspondent à des sphéroïdes prolates orientées de façon aléatoire. Source : Mishchenko et al., 1999.

1.2.4 Propriétés des nuages

1.2.4.1 Nomenclature

La classification des nuages issue de l'Atlas Internationale des Nuages (Rochas, 1925) est la plus répandue dans la communauté météorologique internationale. Elle se base sur une différenciation des nuages en fonction de l'altitude de leur base et de leur aspect visuel. On distingue 3 principaux types de nuages :

- les cirrus, nuages blancs très élevés à l'aspect filamenteux composés de cristaux de glace,
- les cumulus, formant des amas arrondis,
- et les stratus qui ont l'aspect de voiles horizontaux gris.

On dénomme les nuages grâce à des combinaisons de ces trois types, en ajoutant parfois le terme « nimbus » (qui désigne les nuages de pluie) où « alto » (pour les nuages de haute altitude). Les nuages sont répartis sur trois étages de la troposphère (Fig. 1.15) : au niveau bas (entre 0 et 2 km environ) on retrouve les stratocumulus et les stratus, au niveau moyen (entre 2 et 7 km environ), les altocumulus et les altostratus et au niveau supérieur (entre 7 et 12 km environ) se situent les cirrus, les cirrostratus et les cirrocumulus. Certains nuages comme les cumulus, les nimbostratus et les cumulonimbus, ont un fort développement vertical et se retrouvent donc sur plusieurs niveaux.

1.2.4.2 Phase thermodynamique

Si la classification internationale est pertinente dans le cadre de la prévision météorologique, la distinction des nuages selon leur phase thermodynamique est plus adaptée lorsqu'il s'agit de caractériser les interactions entre les nuages et le rayonnement. Les nuages sont constitués d'air sec et de vapeur d'eau condensée sous forme de gouttelettes d'eau liquide ou de cristaux de glace autour de noyaux de condensation (nucléation hétérogène). En se basant sur la phase, trois catégories de nuages peuvent être dégagées :

- Les nuages d'eau liquide : on les trouve principalement dans les basses et moyennes couches de la troposphère où la température est la plus élevée. Ils sont parfois qualifiés de « nuages chauds », ce qui peut induire en erreur car, en l'absence de noyaux de condensation (nucléation homogène), les gouttelettes d'eau peuvent rester à l'état liquide jusque -40°C.
- Les nuages de glace : il s'agit des nuages de type cirrus, situés aux hautes altitudes.
 En général, les cristaux de glace se forment pour des températures négatives autour de noyaux dit « glaçogènes » dont la structure cristalline est proche de celle

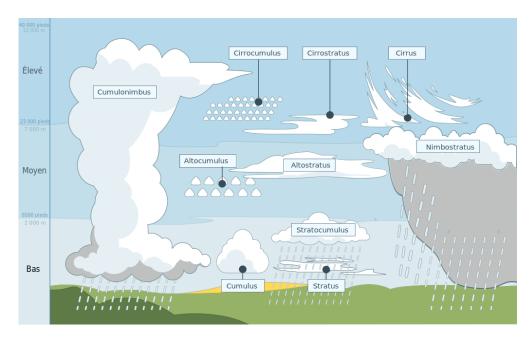


FIGURE 1.15 – Répartition des différents types de nuages par altitude. Source : Valentin de Bruyn / Coton.

de la glace. À l'état solide, la maille élémentaire des molécules d'eau qui requiert le moins d'énergie est le prisme hexagonal. Les noyaux de congélation grandissent ensuite en absorbant la vapeur d'eau environnante selon l'effet Bergeron.

- Les nuages en phase mixte. Certains nuages sont en effet constitués à la fois de gouttelettes d'eau et de cristaux de glace, comme pour les cumulonimbus qui présentent une forte extension verticale. Dans les basses couches des cumulonimbus, on retrouve l'eau à l'état liquide alors que dans les moyennes et hautes couches, la température est suffisamment basse pour permettre la présence de cristaux de glace.

1.2.4.3 Microphysique des particules nuageuses

Comme nous l'avons vu précédemment, la morphologie des particules nuageuses dépend de leur phase. En phase liquide, les particules sont des gouttelettes sphériques dont le diamètre est de l'ordre de la dizaine de micromètres. La fonction de phase peut alors être calculée à partir de la théorie de Mie.

La microphysique des nuages en phase glace est beaucoup plus complexe. Des campagnes de mesures in situ comme FIRE-II (Heymsfield et Iaquinta, 2000) ont montré la grande diversité de formes des cristaux (Fig 1.17). Pour simuler les interactions de ces cristaux avec le rayonnement, de nombreux modèles ont été développés (Fig. 1.17). Ils sont basés sur des cristaux uniques purs (Yang et al., 2003), avec inclusion de bulles d'air

(Labonnote et al., 2000) ou encore sur des ensembles de cristaux (Baran et Labonnote, 2007).

La distribution en taille n(r) des particules nuageuses est souvent décrite à l'aide d'une loi de gamma :

$$n(r) = Cr^{\alpha} exp(-\beta r^{\gamma}) \tag{1.36}$$

où les paramètres γ , α et β varient d'un nuage à un autre et C est une constante reliée au nombre de particules. Le rayon effectif, r_{eff} , et la variance effective, v_{eff} , s'expriment en fonction de n(r) comme définis par les équations (1.33).

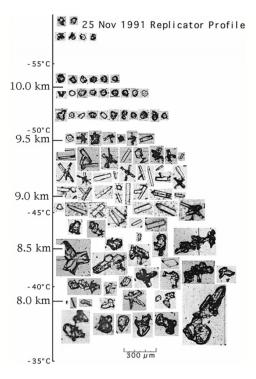


FIGURE 1.16 – Échantillons de cristaux observées dans un cirrus lors de la campagne FIRE-II en 1994. Source : Heymsfield et Iaquinta, 2000.

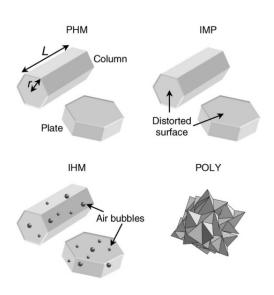


FIGURE 1.17 – Exemples de modèles de cristaux de glace (PHM : Pure Hexagonal Monocrystal - IHM : IMPerfect Heagonal Monocrystal - IHM : Inhomogeneous Hexagonal Monocrystal - POLY : disordered POLYcristal) . Source : Knap et al., 2005.

1.3 Interactions des aérosols avec le rayonnement et les nuages

Comme nous l'avons vu précédemment, les aérosols exercent un rôle important sur le bilan radiatif terrestre par le biais de leurs interactions avec le rayonnement et les nuages. Nous allons maintenant décrire ces effets, classés communément en trois catégories : les effets directs, semi-direct et indirects.

1.3.1 Effet direct

L'effet direct désigne l'impact des aérosols sur la quantité de rayonnement réfléchi et rediffusé par la Terre vers l'espace. Le forçage radiatif associé ΔF (W.m⁻²) s'exprime comme la différence entre le flux radiatif net en présence d'aérosols F_{aer} et celui de l'atmosphère non polluée F_{clean} (sans aérosol) :

$$\Delta F = F_{aer} - F_{clean} = (F_{aer}^{\downarrow} - F_{aer}^{\uparrow}) - (F_{clean}^{\downarrow} - F_{clean}^{\uparrow})$$
 (1.37)

Le flux descendant ne dépendant pas de la présence d'aérosols, on a $F_{aer}^{\downarrow} = F_{clean}^{\downarrow}$. Le forçage radiatif se note alors :

$$\Delta F = F_{clean}^{\uparrow} - F_{aer}^{\uparrow} \tag{1.38}$$

Si dans un premier temps l'effet direct des aérosols est associé à un forçage négatif entraînant un refroidissement (McCormick et Ludwig, 1967), Charlson et Pilat (1969) ont signalé que la perturbation pouvait tout aussi bien être positive en fonction de la capacité de la couche d'aérosols à absorber le rayonnement. Atwater (1970) a ensuite précisé que le signe du forçage direct des aérosols dépendait, non seulement des propriétés des aérosols, mais aussi de l'albédo de la surface (c'est-à-dire sa capacité à réfléchir le rayonnement). Pour illustrer la contribution de ces différents paramètres, nous allons utiliser la méthode développée par Lenoble et al. (1982) qui donne une expression approchée de la perturbation d'albédo sphérique au sommet de l'atmosphère, $\Delta \rho$, due à la présence d'une fine couche d'aérosols d'épaisseur optique τ :

$$\Delta \rho = \rho - \rho_s = \tau \left[\varpi_0 (1 - g)(1 - \rho_s)^2 - 4(1 - \varpi_0)\rho_s \right]$$
 (1.39)

où ρ_s est l'albédo de la surface sous-jacente, ρ , l'albédo au sommet de l'atmosphère et ϖ_0 et g sont respectivement l'albédo de simple diffusion et le facteur d'asymétrie des aérosols.

La figure 1.18 présente les rapports $\Delta \rho / \tau$ pour des aérosols purement diffusants $(\varpi_0 = 1)$ en bleu et pour des aérosols absorbants $(\varpi_0 = 0.8)$ en rouge en fonction de l'albédo de la surface. Lorsque que la scène est lambertienne, la perturbation d'albédo est directement reliée au forçage radiatif : $\Delta F \propto -\Delta \rho$. Une différence d'albédo positive signifie que la scène réfléchit plus le rayonnement solaire avec la couche d'aérosol que sans. C'est le cas notamment lorsque les aérosols sont au-dessus d'une surface sombre (faible ρ_s) comme les océans. Pour des valeurs importantes de l'albédo de surface (comme les zones désertiques et les nuages), le signe de la perturbation dépend fortement de l'albédo de simple diffusion des aérosols. On constate que l'augmentation d'albédo due aux aérosols purement diffusants diminue à mesure que l'albédo de la surface augmente mais la perturbation reste positive. Au contraire, la présence d'aérosols absorbants au-dessus d'une surface brillante entraîne un assombrissement de la scène qui conduit à au-dessus d'une surface brillante entraîne un assombrissement de la scène qui conduit à

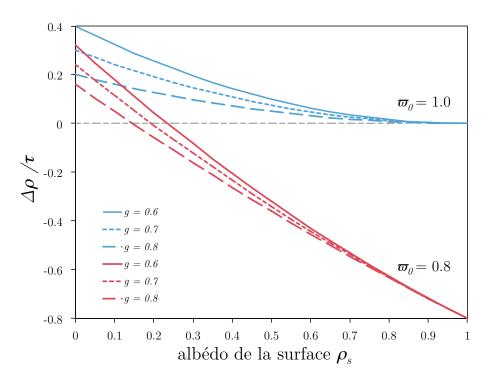


FIGURE 1.18 – Modification de l'albédo d'une scène $\Delta \rho$ liée à la présence d'une fine couche d'aérosol d'épaisseur optique τ en fonction de l'albédo de la surface sous-jacente ρ_s . La différence d'albédo a été calculée à partir de l'expression approchée donnée par Lenoble et al. (1982). Les lignes bleues correspondent aux aérosols purement diffusants ($\varpi_0 = 1.0$) et les lignes rouges aux aérosols absorbants ($\varpi_0 = 0.8$) et g est le facteur d'asymétrie.

un réchauffement. Lorsque $\Delta \rho$ est nulle, on a un équilibre entre l'effet de diffusion et d'absorption des aérosols.

Ainsi, l'effet direct des aérosols est fonction non seulement de la quantité d'aérosols en suspension, mais aussi de leur capacité à absorber le rayonnement et de celle de la surface sous-jacente à le réfléchir.

1.3.2 Effet semi-direct

L'effet semi-direct peut être vu comme un ajustement du système climatique à l'effet direct. Le terme a été introduit pour la première fois par Hansen et al. en 1997 pour désigner l'évaporation des particules nuageuses causées par les aérosols situés à proximité. En absorbant le rayonnement solaire, les aérosols réchauffent la couche atmosphérique dans laquelle ils se situent. L'augmentation de la température entraîne une baisse de l'humidité relative et conduit à une diminution du couvert nuageux. Cependant, la modification du profil vertical de température due aux aérosols conduit à

de multiples et complexes répercussions sur les nuages. En 2010, Koch et Del Genio ont publié une synthèse des différents effets observés, classés selon l'altitude (Fig. 1.19).

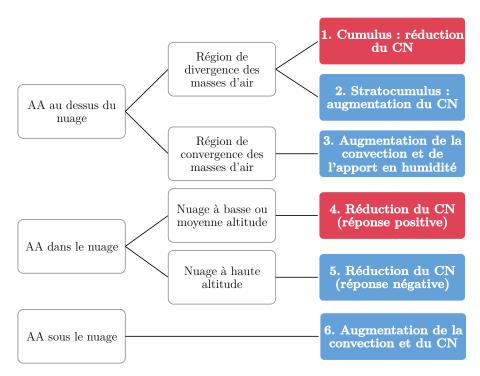


FIGURE 1.19 – Effet radiatif semi-direct en fonction de la position de la couche d'aérosols par rapport au nuage. Les encadrés rouges correspondent aux effets associés à un réchauffement et en bleus, ceux associés à un refroidissement. AA : Absorption du rayonnement solaire par les Aérosols. CN : Couvert Nuageux. Source : Koch et Del Genio, 2010.

À l'intérieur du nuage, l'absorption par les aérosols entraı̂ne la réduction du couvert nuageux selon l'effet décrit précédemment. Selon la nature des nuages, le signe de la perturbation radiative change. La diminution des nuages bas (Ackerman et al., 2000; Hill et Dobbie, 2008), qui ont un fort pouvoir réfléchissant dans le domaine solaire, conduit à la diminution de l'albédo: l'effet est positif. En revanche, Menon et Del Genio (2007) ont montré que la diminution des cirrus peut entraı̂ner un effet négatif (Fig. 1.19, cas 4). En effet, ces nuages sont quasiment transparents pour le rayonnement solaire mais ils absorbent partiellement le rayonnement infrarouge émis par la Terre, ce qui empêche son évacuation vers l'espace (cas 5).

Sous la couche nuageuse, les aérosols favorisent le développement des nuages en renforçant la convection des masses d'air et la condensation des gouttelettes d'eau (cas 6 - Feingold et al., 2005; McFarquhar et Wang, 2006).

L'effet des aérosols au-dessus des nuages va dépendre de la nature des mouvements des masses d'air qui se situent en-dessous. Dans les zones de convergence au-dessus

des terres (cas 3), la modification du profil vertical de température causée par les aérosols augmente la convergence dans les basses couches atmosphériques. Ces masses d'air transportent de l'humidité qui alimente la base des nuages, favorisant ainsi leur développement (Miller et al., 2004; Stephens et al., 2004; Lau et al., 2006). Lorsque les nuages sont situés dans des régions de divergence des flux d'air, la présence d'aérosols stabilise la couche atmosphérique qui est au-dessous. Ces conditions freinent le mélange avec la masse d'air sec située au-dessus, favorisant la formation de certains nuages comme les stratocumulus maritimes (cas 2 - Johnson et al., 2004; Brioude et al., 2009). À l'inverse, la stabilisation des basses couches réduit l'évaporation à la surface, inhibant la formation des cumulus peu épais (cas 1 - Koren et al., 2004, 2008).

1.3.3 Effets indirects

L'impact des aérosols sur le bilan radiatif de la Terre ne se limite pas à leurs interactions avec le rayonnement. Ils exercent également une influence indirecte sur le climat par le biais des nuages. Lorsque la surface des aérosols est hydrophile, ils favorisent la condensation de la vapeur d'eau en servant de noyaux de condensation. De cette façon, le nombre de gouttelettes d'eau est étroitement lié au nombre de noyaux de condensation : pour une quantité de vapeur d'eau donnée, plus il y a d'aérosols, plus les gouttelettes sont nombreuses et plus leur taille est petite. Or, la taille est la concentration des gouttelettes sont des paramètres qui influent sur l'albédo des nuages. À contenu en eau égal, un nuage composé de nombreuses petites gouttelettes a un albédo plus élevé qu'un nuage composé de gouttelettes moins nombreuses et de rayon plus grand. Ainsi, un nuage formé au sein d'un air riche en aérosols réfléchit plus de rayonnement que s'il avait été formé avec peu de noyaux de condensation (Fig. 1.20), conduisant à un refroidissement du système. Ce mécanisme correspond au premier effet indirect, connu aussi sous le nom d'effet Twomey (1974).

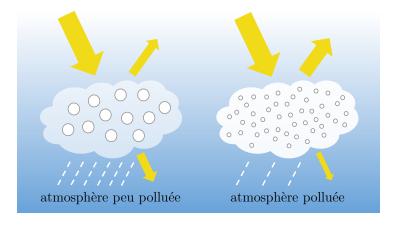


FIGURE 1.20 – Schéma représentant les effets indirects des aérosols.

Le deuxième effet indirect correspond aux répercussions de la diminution de la taille des gouttelettes sur les précipitations et sur la durée de vie des nuages (Albrecht, 1989). Les gouttes de pluie sont formées par coalescence des gouttelettes. Plus ces dernières sont petites, plus il faudra de temps pour obtenir des gouttes de masse suffisante pour engendrer de la pluie. La présence d'aérosols conduit à un allongement du temps de résidence des gouttelettes d'eau dans l'atmosphère et donc de la durée de vie des nuages.

1.4 Les aérosols dans les scènes nuageuses

1.4.1 Incertitudes dans les modèles climatiques

Les aérosols exercent un rôle important sur le bilan radiatif terrestre par le biais de processus diverses et complexes. Malgré l'amélioration de notre compréhension de leurs effets, la quantification de l'impact des aérosols reste une problématique majeure pour les sciences du climat. En effet, le forçage radiatif des aérosols à la fois anthropiques (Boucher et al., 2013) et naturels (Carslaw et al., 2010) est toujours entâché de fortes incertitudes et tout particulièrement pour les aérosols dans les scènes nuageuses. Ces incertitudes sont liées, d'une part, à la difficulté de modéliser des processus d'interaction aussi complexes : selon le dernier rapport de l'IPCC, la représentation de ces mécanismes dans les modèles climatiques est associée à des niveaux de confiances faibles pour le premier effet indirect et l'effet semi-direct et très faibles pour le deuxième effet indirect (Fig. 1.21).

D'autre part, la variabilité des propriétés des aérosols et de leurs distributions temporelle et spatiale rendent l'étude des effets des aérosols sur le climat particulièrement complexe. Bien que les interactions des aérosols avec le rayonnement soient bien comprises (niveau de confiance élevé), la valeur du forçage radiatif direct varie beaucoup selon les modèles considérés (Myhre et al., 2013a). De fortes incertitudes ont ainsi été observées, notamment lorsque les aérosols sont situés au-dessus des nuages (Stier et al., 2013), comme dans la région du sud-est de l'océan Atlantique.

1.4.2 Cas du sud-est de l'océan Altantique

Le sud-est de l'océan Atlantique est une région particulièrement adaptée aux études des interactions aérosol-rayonnement-nuage. Avec des émissions à hauteur de 25 TgC par an (soit environ 50% des émissions globales), l'Afrique est la principale source d'aérosols de feux de biomasse (van der Werf et al., 2010). Dans le centre et le sud du continent, la saison sèche (de juin à octobre) s'accompagne d'importantes activités de brûlage provenant des pratiques agricoles et domestiques et de la déforestation. La

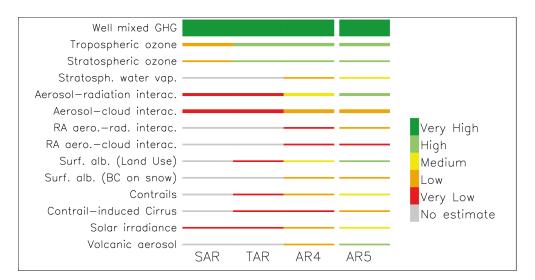


FIGURE 1.21 – Évolution du niveau de confiance dans les mécanismes de forçages dans les 4 derniers rapport de l'IPCC. L'épaisseur des barres représente l'amplitude relative des forçages estimés (avec une épaisseur minimum pour des raisons de clarté). L'effet direct des aérosols correspond aux interactions aérosol-rayonnement et le premier effet direct aux interactions aérosol-nuage. Les « ajustements rapides » (RA) aux interactions aérosol-rayonnement et aux interactions aérosol-nuage désignent respectivement l'effet semi-direct et le deuxième effet indirect. Source : Myhre et al., 2013b.

circulation anticyclonique et le transport des masses d'air vers l'ouest (Garstang et al., 1996) entraînent les aérosols vers les côtes namibienne et angolaise. On observe alors régulièrement ces aérosols de feux de biomasse au-dessus de la couche quasi-permanente de stratocumulus qui recouvre le sud-est de l'océan Atlantique.

Les aérosols de feux de biomasse sont composés d'un mélange de carbone noir, de carbone organique et de composés inorganiques (nitrate, sulfate ...). Le carbone noir est un constituant qui absorbe fortement le rayonnement solaire (Bond et al., 2013). De plus, une partie du carbone organique, qu'on appelle « carbone brun », contribue également à l'absorption du rayonnement dans l'ultra-violet (Saleh et al., 2014). On peut donc s'attendre à des forçages directs positifs potentiellement importants lorsque ces aérosols sont situés au-dessus de nuages réfléchissants.

La figure 1.22 montre la moyenne, pour les mois d'août et septembre, du forçage radiatif direct des aérosols calculée par différents modèles numériques. On constate qu'il existe une grande variabilité des prédictions réalisées par les modèles, avec une moyenne régionale allant de -0.82 à +1.62 W.m $^{-2}$, traduisant l'incertitude particulièrement forte de l'effet direct des aérosols dans la région. Ces différences montrent que la représentation des propriétés et de la distribution géographique des aérosols et des nuages varient significativement d'un modèle à un autre.

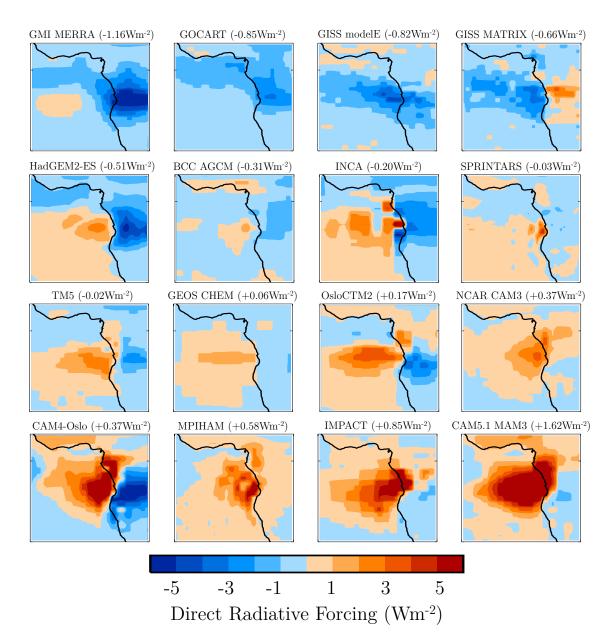


FIGURE 1.22 — Forçage radiative direct des aérosols calculé par différents modèles « AeroCom » pour la région du sud-est de l'océan Atlantique en août-septembre. Source : Nicolas Bellouin.

De Graaf et al. (2012) ont développé un algorithme permettant de calculer le forçage radiatif direct instantané des aérosols au-dessus des nuages à partir des mesures de l'instrument satellitaire SCIAMACHY (Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography). Un forçage moyen d'environ 30-35 W.m⁻² a été déterminé en août-septembre avec des valeurs instantanées s'élevant jusqu'à +150 W.m⁻². L'analyse des sorties du modèle HadGEM2 (Hadley Centre Global Environmental Model version 2) suggère que les modèles ne reproduisent pas de tels pics de perturbation (De Graaf et al., 2014).

Pour comprendre l'origine de ces différences, il est nécessaire d'étendre la comparaison aux principales propriétés des aérosols et des nuages, pour ce type de scénario. De plus, la mesure de ces propriétés permettrait, en apportant une contrainte supplémentaire aux modèles, de diminuer les incertitudes. En effet, pour précisément déterminer l'effet direct des aérosols au-dessus des nuages, les modèles climatiques ont besoin de représenter les paramètres suivants : l'amplitude et la distribution géographique de l'épaisseur optique des aérosols, la variation spectrale de l'albédo de simple diffusion, le profil vertical des aérosols, la distribution géographique des nuages, la fraction nuageuse, le contenu en eau liquide, le rayon effectif des gouttelettes et le profil vertical des nuages (Keil et Haywood, 2003; Samset et al., 2013).

1.4.3 Les limitations de l'observation

Il existe différentes méthodes permettant de mesurer des propriétés des aérosols. La première est de les mesurer directement en analysant des échantillons prélevès in situ. Des campagnes de mesures aéroportées se sont notamment intéressées aux aérosols de feux de biomasse africaine comme les campagnes SAFARI-2000 (Southern African Regional Science Initiative - Swap et al., 2002) et DABEX (Dust and Biomass-burning Experiment - Haywood et al., 2008). Si les observations in situ permettent de mesurer un large spectre de paramètres physiques, chimiques et optiques, elles sont néanmoins très limitées dans le temps et l'espace.

Il est également possible de restituer certaines propriétés des aérosols à distance en mesurant le rayonnement diffusé ou transmis. En télédétection, on différencie les instruments passifs des instruments actifs selon que leur source de rayonnement est naturelle (le Soleil ou la Terre) ou artificielle (comme pour les lidars et les radars). Les instruments embarqués à bord des satellites conviennent particulièrement à l'observation des aérosols à grande échelle spatiale et temporelle (Kaufman et al., 2002).

L'étude des aérosols dans les scènes nuageuses est une thématique relativement récente en télédétection. De manière opérationnelle, seul le lidar spatial CALIOP (Cloud-Aerosol Lidar with Othogonal Polarization), dont le principe est de sonder verticalement l'atmosphère, permet de caractériser l'extinction des aérosols situés audessus des nuages (Winker et al., 2009). Cependant, avec sa fauchée en rideau étroit (90 m), CALIOP a une couverture spatiale limitée, ce qui constitue une limitation forte en terme d'échantillonnage d'évènements. Pour les instruments passifs, la difficulté consiste à séparer la contribution des aérosols de celle des nuages qui est plus intense. C'est pourquoi les méthodes d'inversions opérationnelles des aérosols basées sur des mesures de télédétection passive sont restreintes aux situations en ciel clair (sans nuage).

En plus du manque d'information sur les propriétés des aérosols dans les scènes nuageuses, la présence d'une couche d'aérosols au-dessus d'un nuage peut biaiser les propriétés des nuages restituées à partir des mesures satellites (Haywood et al., 2004). La figure 1.23 représente les luminances utilisées par l'algorithme MODIS (Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer) pour restituer les propriétés des nuages. Les courbes rouges et bleues représentent respectivement les cas avec et sans aérosol absorbant au-dessus du nuage. L'algorithme développé par Nakajima et King (1990) 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 $(2.13 \, \mu \text{m})$. À épaisseur optique du nuage égale, le signal perçu par l'instrument MODIS à $0.858\,\mu\mathrm{m}$ est plus faible lorsque des aérosols absorbants sont situés au-dessus du nuage. Or, la méthode d'inversion utilisée ne prend pas en compte l'absorption du rayonnement par les aérosols. Par conséquent, l'algorithme interprétera ce signal atténué comme celui provenant d'un nuage moins épais optiquement. De la même façon, la présence d'aérosols plus gros (qui interagissent encore avec le rayonnement à des longueurs d'onde plus élevées) au-dessus des nuages peut entraîner des biais sur l'estimation du rayon effectif des gouttelettes. Ces deux paramètres sont reliés à l'albédo du nuage : plus son épaisseur optique est grande et ses gouttelettes petites, plus il sera réfléchissant. Une mauvaise estimation de ces deux paramètres engendrera des biais sur le calcul du forçage.

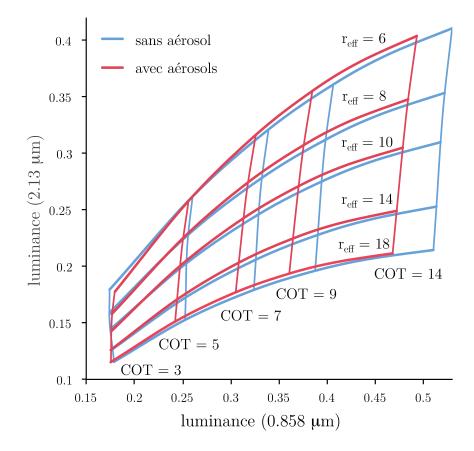


FIGURE 1.23 – Luminances utilisées pour la restitution de l'épaisseur optique des nuages (COT) et du rayon effectif des gouttelettes $(r_{eff}$ en μ m) par l'algorithme MODIS. Les courbes bleues correspondent au cas sans aérosols. Les courbes rouges montrent le cas où une couche d'aérosols absorbants est située au-dessus du nuage (AOT=0.2, k=0.01). Adaptée de Haywood et al., 2004.

1.5 Objectifs de la thèse

Le travail présenté dans ce document porte sur l'analyse des aérosols au-dessus des nuages d'eau liquide à partir des mesures de l'instrument POLDER (Polarization and Directionality of Earth Reflectances) à bord du satellite PARASOL (Polarisation et anisotropie des réflectances au sommet de l'atmosphère). Cette étude s'articule autour de 4 axes : la détermination des propriétés des aérosols, la quantification de leur impact radiatif direct, la comparaison des résultats obtenus avec les modèles climatiques, ainsi que l'analyse de la perturbation radiative à l'échelle globale

Notre premier objectif est de développer une méthode opérationnelle permettant de déterminer les paramètres clés pour le calcul du forçage direct des aérosols au-dessus des nuages : l'épaisseur optique des aérosols, leur albédo de simple diffusion et l'albédo du nuage sous-jacent (chapitre 3). Cette méthodologie s'appuie sur l'approche déjà mise en place au Laboratoire d'Optique Atmosphérique et donnant accès aux propriétés de diffusion d'une couche d'aérosols au-dessus d'un nuage d'eau liquide à partir la mesure de la polarisation issues de POLDER (Waquet et al., 2009, 2013a). L'incertitude inhérente aux approximations utilisées sera discutée, à la fois en terme de paramètres restitués, et en terme de forçage. Puis, les résultats obtenus sur différents cas d'étude constrastés seront présentés.

Le second objectif consiste à calculer le forçage radiatif direct des aérosols au-dessus des nuages (chapitre 4). Une méthode approchée inspirée des travaux de Lenoble et al. (1982) a d'abord été envisagée. Nous en montrerons les limitations. Nous présenterons également la seconde méthode que nous avons mise en œuvre, basée sur le calcul précis des flux radiatifs. Les perturbations radiatives calculées avec les deux procédures seront comparées sur des cas d'étude. Les flux modélisés avec la seconde méthode seront ensuite comparés aux valeurs mesurées par l'instrument satellitaire CERES (Clouds and the Earth's Radiant Energy System).

Le dernier objectif est d'évaluer l'intérêt des paramètres aérosols resitués par POL-DER pour mieux contraindre les modèles numériques. Le chapitre 5 sera, d'une part, consacré à la mise en place d'une méthodologie de comparaison des propriétés des aérosols au-dessus des nuages que nous avons restitués avec celles des modèles AeroCom. Enfin, le cas du sud-est de l'océan Atlantique pendant la saison des feux sera analysé en détail.

Enfin, la méthode d'inversion ainsi que le modèle de calcul du forçage ont été appliquées à une année de données POLDER. Une analyse préliminaire des résultats obtenus à l'échelle globale sera présentée.

Chapitre 2

Outils numériques et instrumentaux

Le travail présenté dans les chapitres suivants a nécessité l'utilisation de plusieurs codes de calcul de transfert radiatif et a fait usage des données provenant de différents instruments satellitaires. Ce deuxième chapitre est dédié à la présentation de ces outils.

2.1 Codes de transfert radiatif

La connaissance du champ de luminances est fournie par la solution de l'équation de transfert radiatif. Dans un milieu diffusant et absorbant, l'équation matricielle de la propagation du rayonnement est :

$$\mu_{v} \frac{d\widetilde{L}(\tau, \mu_{v}, \varphi_{v})}{d\tau} = \widetilde{L}(\tau, \mu_{v}, \varphi_{v}) - \frac{\varpi_{0}(\tau)}{4\pi} \widetilde{F}(\tau, \mu_{v}, \varphi_{v}, \mu_{s}, \varphi_{s}) \widetilde{E}_{s} e^{-\tau/\mu_{s}}$$

$$- \frac{\varpi_{0}(\tau)}{4\pi} \int_{-1}^{+1} \int_{0}^{2\pi} \widetilde{F}(\tau, \mu_{v}, \varphi_{v}; \mu'_{v}, \varphi'_{v}) \widetilde{L}(\tau, \mu_{v}, \varphi_{v}; \mu'_{v}, \varphi'_{v}) d\mu'_{v} d\varphi'_{v}$$
(2.1)

où μ_v et μ_s sont les cosinus des angles de visée et solaire zénithal, φ_v et φ_s , les angles azimutaux de visée et solaire, \tilde{L} , le vecteur de Stokes et \tilde{F} , la matrice de phase. En dehors de la diffusion simple, cette équation intégro-différentielle n'admet pas de solution analytique exacte. Les codes de transfert radiatif sont des méthodes numériques de résolution de cette équation (Lenoble, 1985). Ils sont basés sur des hypothèses et approximations permettant chacun de répondre à des applications spécifiques. Ils sont classés en 2 catégories. Les codes dits « 1D » correspondent aux méthodes dites « plans parallèles », c'est-à-dire qu'elles consistent à découper l'atmosphère en plusieurs couches horizontales homogènes supposées infinies. Les codes dits « 3D » désignent les approches plus complexes prenant en compte l'hétérogénéité spatiale.

2.1.1 La Méthode des Ordres Successifs de diffusion

La méthode des Ordres Successifs de Diffusion (OSD ou SOS en anglais) est une approche 1D basée sur le développement de la matrice de luminance en ordre de diffusion :

$$\widetilde{L}(\tau, \mu_v, \varphi_v) = \sum_{n=1}^{+\infty} \widetilde{L}_n(\tau, \mu_v, \varphi_v)$$
(2.2)

où $\widetilde{L_n}$ est la luminance à l'ordre de diffusion n. Numériquement, il suffit d'arrêter la sommation lorsque la contribution du n-ième ordre devient négligeable. Cette approche est particulièrement adaptée aux cas où $\widetilde{L_n}$ décroît rapidement avec l'ordre de diffusion comme lorsque l'épaisseur optique du milieu n'est pas trop forte.

Le code SOS développé au laboratoire par Deuzé et al. (1989) permet de calculer les composantes du vecteur de Stokes. Dans notre étude, il a été utilisé pour simuler les luminances polarisées.

2.1.2 La méthode de l'Adding-Doubling

Dans l'approche dite de « l'Adding-Doubling », l'atmosphère est divisée en fines couches afin de pouvoir, pour chacune d'entre elles, calculer rapidement la solution de l'équation de transfert radiatif. Si l'épaisseur optique d'une couche est suffisamment petite, on peut notamment appliquer l'approximation de la diffusion primaire. Des fonctions de réflexion R et de transmission T sont alors déterminées pour chaque couche. Elles sont ensuite recombinées deux à deux et les nouvelles fonctions de réflexion et de transmission sont obtenues en calculant les réflexions successives entre les couches (Fig. 2.1).

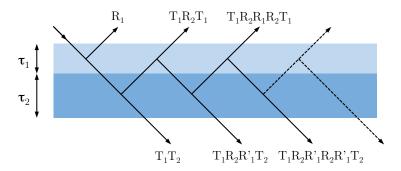


FIGURE 2.1 – Addition de deux couches d'épaisseur optique τ_1 et τ_2 . T et R représentent la transmission et la réflexion totale pour un rayonnement incident descendant. T' et R' correspondent aux mêmes quantités définies pour un rayonnement incident montant.

L'« Adding » consiste à reconstruire une couche d'épaisseur optique τ par addition de couches d'épaisseur optique τ_i . Pour des couches homogènes, on applique la méthode

« Doubling » : on ré-assemble successivement des couches d'épaisseur optique $2\tau_i$, $4\tau_i$... Juqu'à atteindre l'épaisseur optique souhaitée. L'Adding-Doubling est une procédure qui a l'avantage de rester rapide en cas de forte épaisseur optique. Les luminances totales ont été simulées avec le code de De Haan et al. (1987).

2.1.3 GAME

De manière générale, l'équation de transfert radiatif permet de décrire le rayonnement dans un continuum de directions couplées par le terme de diffusion. La méthode dites des « ordonnées discrètes », décrite par Chandrasekhar (1950), consiste à discrétiser le champ de rayonnement selon un nombre fini de directions de propagation en utilisant une quadrature de Gauss-Legendre. De cette façon, la partie intégrale de l'équation est remplacée par une somme :

$$\int_{-1}^{+1} \widetilde{F}(\tau, \mu_v; \mu_v') \widetilde{L}(\tau, \mu_v') d\mu_v' = \sum_{\substack{i=-n\\i\neq 0}}^{n} w_i \widetilde{F}(\tau, \mu_v; \mu_{v,i}) \widetilde{L}(\tau, \mu_{v,i}))$$
(2.3)

où w est un poids de la quadrature et l'indice i désigne une ordonnée discrète. Le code DISORT (DIScrete ORdinaTes - Stamnes et al., 1988) est une méthode numérique de résolution de l'équation de transfert radiatif basée sur les ordonnées discrètes. Lorsque la fonction de phase présente une forte pointe en diffusion avant, cet algorithme utilise la méthode « $\delta-m$ » (Wiscombe, 1977) afin de réduire le temps de calcul. Dans ce cas, la fonction de phase est lissée en tronquant le pic de diffusion à l'avant et l'énergie radiative qui a été retranchée est alors ajoutée à la luminance directe. Si cette approximation peut affecter la précision sur les luminances, l'intégration sur toutes les directions permet la conservation de l'énergie et des flux.

GAME (Global Atmospheric ModEl - Dubuisson et al., 2006) est un code de transfert radiatif basé sur DISORT. Il a été utilisé dans cette thèse pour modéliser les flux au sommet de l'atmosphère. Comme pour les méthodes précédentes, cette aproche utilise une décomposition de l'azimut en séries de Fourier pour les luminances et les éléments de la fonction de phase sont décomposés en 2N polynômes de Legendre. Dans un souci de clarté, l'indice désignant l'ordre de la série de Fourier est omis pour les termes en F et L dans l'équation 2.3.

2.1.4 3DMCPOL et 3DCLOUD

Si les codes 1D permettent de nombreuses applications grâce à leurs faibles temps de calcul, l'approche plan parallèle ne permet pas toujours une modélisation précise du champ de rayonnement, notamment dans le cas d'atmosphère nuageuse. En effet, les nuages sont des systèmes hétérogènes, tant au niveau de leur forme que de leurs propriétés microphysiques. Ces hétérogénéités ont des effets sur la propagation du rayonnement qui varient selon l'échelle spatiale (Fig. 2.2 - Marshak et Davis, 2005). Ne pas considérer les échanges de photons entre les colonnes atmosphériques (approximation des colonnes indépendantes) est la plus grande source d'erreur pour des échelles inférieures au kilomètre (Davis et al., 1997; Marshak et al., 1998; Oreopoulos et al., 2000). Pour des échelles plus grandes, le biais « plan-parallèle » devient prépondérant (Cahalan et al., 1994; Davis et al., 1997; Szczap et al., 2000). Ce biais provient du fait que la relation entre la luminance totale et l'épaisseur optique n'est pas linéaire à grande échelle. L'épaisseur optique déterminée à partir de l'hypothèse du pixel homogène est alors inférieure à l'épaisseur optique moyenne. Ces effets nous révèlent que l'utilisation de modélisations 1D pour la restitution des paramètres des nuages peut être une source de biais.

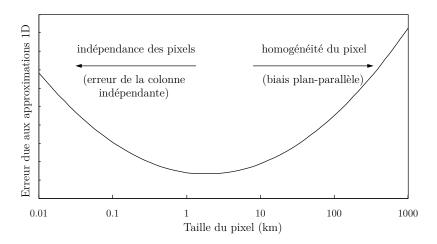
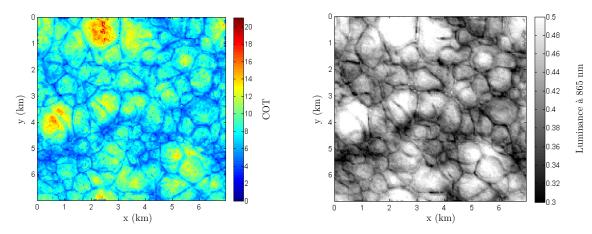


FIGURE 2.2 – Représentation qualitative des erreurs de modélisation du rayonnement dues à l'utilisation d'un code de transfert radiatif 1D selon la taille de la zone considérée.

Afin de quantifier ces erreurs, des comparaisons ont été effectuées entre les modélisations 1D et celles réalisées à partir du code de transfert radiatif 3DMCPOL (Cornet et al., 2010). Cet algorithme, basé sur la méthode Monte-Carlo (Metropolis et Ulam, 1949), permet de simuler le transfert radiatif de manière plus réaliste en faisant se propager le rayonnement dans une atmosphère tridimensionnelle, c'est-à-dire divisée en voxels (pixels 3D) homogènes et de dimensions variables. Il réalise le calcul des flux, des luminances totales et des luminances polarisées d'après une procédure qui consiste à émettre des paquets de photons, dont la direction est définie par la position du Soleil, et à suivre leur progression dans l'atmosphère jusqu'à ce qu'ils en sortent ou qu'ils soient absorbés. Les différents aspects qui régissent les interaction des photons avec le milieu (comme la distance parcourue entre deux interactions, l'angle de diffusion, le choix entre l'absorption et la diffusion par les particules ou le choix entre la transmission et la réflexion par la surface) sont décrits à l'aide de lois statistiques.

Les champs nuageux qui ont été utilisés pour les calculs 3D ont été modélisés avec le code 3DCLOUD (Szczap et al., 2014). Cet algorithme intègre les équations de base de la dynamique et de la thermodynamique de l'atmosphère et, à partir de profils météorologiques donnés (humidité, pression, température et vitesse de vent), il génère des nuages aux structures tridimensionnelles avec un modèle de croissance stochastique. L'utilisateur contrôle l'hétérogénéité de la scène nuageuse en fixant le paramètre d'inhomogénéité p d'un paramètre du nuage, défini comme la déviation standard de ce paramètre normalisée par sa moyenne. Les figures 2.3a et 2.3b montrent un exemple de scène nuageuse 3D modélisée en terme d'épaisseur optique nuage et de luminance.



(a) Champ d'épaisseur optique nuage (en anglais Cloud Optical Thickness - COT) 3D obtenu avec 3DCLOUD pour $COT_{moy} = 8$ et p(COT) = 0.27 à 35m.

(b) Luminance totale simulée avec 3DMCPOL ($[\theta_s, \theta_v, \varphi_r] = [40^\circ, 42.3^\circ, 61.6^\circ]$).

FIGURE 2.3 – Modélisation tridimensionnelle d'une scène nuageuse hétérogène. Source : Céline Cornet (LOA) et Frédéric Szczap(LaMP).

2.2 POLDER/PARASOL

2.2.1 L'instrument POLDER

POLDER (Polarization and Directionality of Earth Reflectances) est un polarimètre imageur multispectral à grand champ. En plus de mesurer la luminance du rayonnement qui lui parvient, l'instrument a la particularité de caractériser son état de polarisation. Conçu au Laboratoire d'Optique Atmosphérique (Deschamps et al., 1990, 1994) en collaboration avec le CNES (Centre National d'Études Spatiales), le prototype aéroporté a été décliné sur les 3 plateformes satellitaires ADEOS-I, ADEOS-II et PARASOL.

Ceci en a fait le premier, et aujourd'hui encore, le seul capteur spatial permettant de décrire spectralement et directionnellement la polarisation du rayonnement provenant des interactions avec le système Terre-atmosphère.

POLDER est composé d'une optique télécentrique à large champ, d'une roue porte-filtres et d'un détecteur CCD à deux dimensions (Fig. 2.4). 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. L'ouverture d'objectif, de $\pm 51^{\circ}$ et $\pm 43^{\circ}$ selon chacun de ses axes, lui offre une fauchée large de 2100 km dans la trace de l'orbite et 1600 km perpendiculairement. La matrice CCD, composée de 274×242 pixels, permet d'acquérir des images avec une résolution de l'ordre de 6 km. Une séquence d'images, correspondant à un tour de roue, est obtenue en 20 secondes.

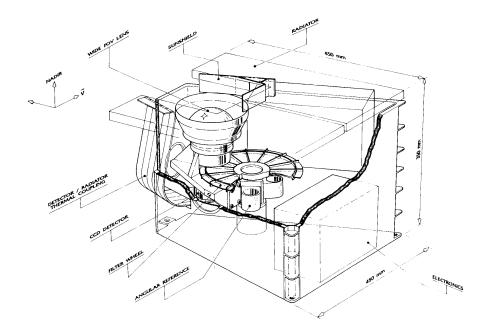


FIGURE 2.4 – Schéma de l'instrument POLDER. Source : Deschamps et al., 1990.

2.2.2 Principe de la mesure

2.2.2.1 Étalonnage

Les pixels de la matrice de détection sont des capteurs photo-électriques qui mesurent une différence de potentiel, convertie ensuite en compte numérique. Le passage de l'image brute en compte numérique (niveau 0) aux paramètres de Stokes (niveau 1) se fait au moyen de coefficients d'étalonnage, qui dépendent du pixel et du filtre considéré. Si ces coefficients ont déjà été déterminés avant le lancement du satellite, les dommages liés à la mise en orbite et au vieillissement naturel de l'instrument nécessitent de les réajuster en vol. POLDER n'intègre pas de dispositif interne d'étalonnage. L'étalonnage radiométrique s'effectue alors grâce aux mesures faites pour des cibles naturelles de référence. Cette procédure, décrite par Hagolle et al. (1999) et Fougnie et al. (2007), est résumée ci-dessous.

- Étalonnage absolu en diffusion Rayleigh. Au dessus de surface sombre, comme l'océan, 90 % du signal mesuré est dû à la diffusion par les molécules, dont la luminance est modélisable précisément. L'étalonnage absolu des bandes aux courtes longueurs d'onde (jusqu'à 670 nm) est réalisé au-dessus de sites océaniques lorsque l'épaisseur optique en aérosols est faible. Une correction du contenu en aérosols résiduel est faite grâce à la mesure de l'épaisseur optique obtenue à 865 nm en supposant un modèle d'aérosols marins.
- Étalonnage inter-bande sur le sunglint. La réflexion spéculaire du soleil sur l'océan forme une tâche brillante blanche, appelée sunglint ou glitter. Le signal produit dépend fortement de la rugosité de la surface océanique contrôlée, notamment, par le vent de surface et l'angle solaire. Une calibration absolue utilisant les mesures acquises dans le sunglint nécessiterait une modélisation très fine de la surface. Une telle précision est trop difficile à atteindre en pratique. En revanche, il est possible d'exploiter la faible dépendance spectrale du signal pour inter-calibrer les différents canaux. La calibration absolue étant plus précise dans le rouge, la bande à 670 nm est généralement prise comme référence.
- Étalonnage inter-bande au-dessus des nuages. Comme pour le sunglint, certains nuages épais peuvent être considérés comme des cibles spectralement blanches et donc être utilisés pour l'inter-étalonnage des différentes bandes spectrales. Pour s'assurer de la validité de cette approximation, les observations sont sélectionnées pour privilégier les nuages hautement réfléchissants, formés au-dessus de l'océan, et dont l'altitude du sommet est suffisamment haute.
- Étalonnage croisé au-dessus des déserts. Une vingtaine de sites désertiques de 100 x 100 km² ont été sélectionnés pour leur homogénéité spatiale et leur stabilité temporelle. Les mesures acquises au-dessus des ces sites peuvent être comparées à celles acquises par d'autres instruments pour un étalonnage croisé.

2.2.2.2 Mesures en polarisation

Les mesures dans les différentes bandes spectrales sont acquises de manière séquentielle grâce à la rotation de la roue porte-filtre, dont le concept est présenté Fig. 2.5. Celle-ci dispose de 16 emplacements, dont 7 sont dédiés aux mesures de luminances totales et 9 aux mesures polarisées qui font la spécificité de POLDER. En effet, pour

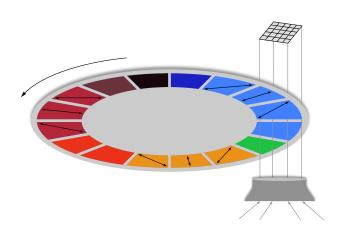
chacune des trois voies polarisées, il est nécessaire d'effectuer trois acquisitions, correspondant à trois directions de polarisation différentes. Le même filtre apparaît alors trois fois, doublés d'un polariseur (analyseur) décalé de 60° par rapport aux deux autres (Fig. 2.6). Les signaux, L_i , mesurés dans chacune des combinaisons filtre-analyseurs sont donnés par la loi de Malus :

$$L_{1} = \frac{L_{nat}}{2} + L_{p} \cos^{2}(60^{\circ} + \chi)$$

$$L_{2} = \frac{L_{nat}}{2} + L_{p} \cos^{2}(\chi)$$

$$L_{3} = \frac{L_{nat}}{2} + L_{p} \cos^{2}(60^{\circ} - \chi)$$
(2.4)

où L_1 , L_2 et L_3 correspondent aux polariseurs P_1 , P_2 et P_3 et χ à l'angle de polarisation du champ électrique par rapport à la direction de référence, ici, \vec{E} .



 P_2 R_1 R_2 R_3 R_4 R_4 R_4 R_4 R_5 R_4 R_4 R_5 R_4 R_5 R_4 R_5 R_5

FIGURE 2.5 – Représentation de la roue porte-filtres.

FIGURE 2.6 – Disposition des analyseurs.

La luminance totale L et la luminance polarisée L_p s'expriment alors :

$$L = \frac{2}{3} \left(L_1 + L_2 + L_3 \right) \tag{2.5}$$

$$L_p = \frac{2\sqrt{2}}{3}\sqrt{(L_1 - L_2)^2 + (L_2 - L_3)^2 + (L_1 - L_3)^2}$$
 (2.6)

2.2.2.3 Mesures multidirectionnelles

Une autre caractéristique de POLDER est de fournir une information multidirectionnelle sur le rayonnement diffusé par le système Terre-Atmosphère. Le principe de la mesure se base sur le recouvrement des images acquises consécutivement. Sur la

figure 2.7, l'instrument enregistre trois images (e1, e2 et e3) le long de son orbite. Les images e1 et e2 se recouvrent, de sorte que le point A est observé deux fois, mais sous des angles différents.

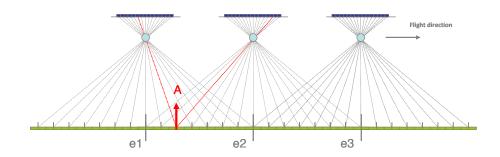


FIGURE 2.7 – Principe de l'acquisition de mesures multidirectionnelles par POLDER. Source : ESA.

Avec une acquisition toutes les 20 secondes, un point de la surface de la Terre, observé initialement au nadir par POLDER/PARASOL ($\theta_v = 0^{\circ}$), sera décalé d'environ 9° sur l'image suivante. Son optique à très large champ permet ainsi à l'instrument d'observer une cible jusqu'à 16 fois sous différentes géométries de visée (θ_v, φ_v).

2.2.3 La mission PARASOL

2.2.3.1 L'héritage de POLDER 1 et 2

Lancé en 1996, la plateforme japonaise ADEOS-1 (Advanced Earth Observing Satellite) est le premier satellite à intégrer l'instrument POLDER. Les mesures polarisées s'étaient révélées être pertinentes pour caractériser les nuages d'acide sulfurique de Vénus dans les années 60-70 (Dollfus et Coffeen, 1970; Hansen et Hovenier, 1974). Plusieurs campagnes avaient ensuite montré l'intérêt de ce type d'observations pour l'analyse de l'atmosphère terrestre (Coulson et al., 1986; M. Herman et al., 1986). Déjà pendant la phase de préparation à la mission spatiale, les mesures aéroportées ont dévoilé le potentiel de POLDER pour caractériser les aérosols, les nuages et la surface (Bréon et Deschamps, 1993; Deuzé et al., 1993; Goloub et al., 1994). Malheureusement, des problèmes de panneaux solaires ont interrompu les missions ADEOS-1 et ADEOS-2 (lancée en 2002), après 8 et 9 mois de mesures, respectivement.

Compte tenu de la richesse des informations fournies par POLDER (Bermudo et al., 2004), le CNES tente à nouveau l'expérience avec le micro-satellite PARASOL, lancé le 18 décembre 2004. Sa mission scientifique est naturellement très proche de celle d'ADEOS, à savoir, caractériser les propriétés radiatives des aérosols et des nuages afin de mieux comprendre leurs influences sur le climat (Tanré et al., 2011).

Les mesures polarisées et multidirectionnelles apportent une contrainte forte sur les modèles d'aérosols. Au-dessus des océans, ces observations permettent de séparer la contribution du mode fin et du mode grossier (Deuzé et al., 1999) ou encore d'évaluer la non-sphéricité des particules (M. Herman et al., 2005). 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. La multidirectionnalité favorise la distinction entre le ciel clair et les nuages (Buriez et al., 1997). La signature angulaire en polarisation permet de spécifier la phase thermodynamique du nuage (Goloub et al., 2000; Riedi et al., 2010). Les observations multi-angulaires et multi-spectrales en polarisation sont sensibles à la distribution en taille des gouttelettes d'eau (Bréon et Goloub, 1998) et à la présence de nuage de glace (Chepfer et al., 1999).

D'un point de vue technique, l'instrument est quasiment identique aux versions précédentes. On notera tout de même que l'optique télécentrique a été tournée de 90° afin de privilégier l'aspect multidirectionnel à la couverture spatiale, l'ajout de la bande spectrale à 1020 nm pour les comparaisons avec le lidar CALIOP ainsi que le remplacement des voies polarisées à 443 nm par 490 nm. Le tableau 2.1 résume les principales caractéristiques des différentes bandes spectrales ainsi que leurs objectifs scientifiques principaux.

Longueur d'onde (nm)	Largeur de bande (nm)	Polarisation	Objectif principal
443	13.4	-	Détection des nuages, Couleur de l'océan
490	16.3	oui	Propriétés des aérosols, Pression des nuages
565	15.4	-	Comparaison avec CALIOP
670	15.1	oui	Propriétés des aérosols et des nuages
763	10.9	-	Pression apparente du commetdes
765	38.1	-	nuages par différence d'absorption dans la bande A de l'oxygène
865	33.7	oui	Propriétés des nuages et des aérosols
910	21.1	-	Vapeur d'eau
1020	17.1	-	Propriétés des aérosols, Comparaison avec CALIOP

Table 2.1 – Caractéristiques des bandes spectrales de POLDER/PARASOL.

Initialement prévue pour deux ans, la mission PARASOL est sans aucun doute un succès : entre les premières images enregistrées le 7 janvier 2005 (Fig. 2.8) et la désactivation du satellite le 18 décembre 2013, POLDER aura permis l'acquisition de près de 9 ans de données avec une disponibilité de plus de 90% (Tanré, 2014).

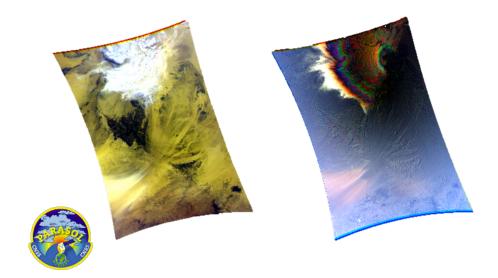


FIGURE 2.8 – Images composites (R,V,B) en lumière naturelle (à gauche) et en lumière polarisée (à droite) enregistrées par PARASOL le 7 janvier 2005. Sur l'image de gauche, on observe le désert du Tchad en jaune, la tâche sombre correspondant au massif du Tibesti. En lumière polarisée, les structures de surface ont quasiment disparues. La dominante bleue provient de la diffusion atmosphérique. La tâche irisée indique la présence d'un nuage composé de gouttelettes d'eau liquide en haut à droite de l'image. Enfin, les mesures polarisées permettent de révéler un panache d'aérosols désertiques en orangé, en bas à droite. Source : CNES.

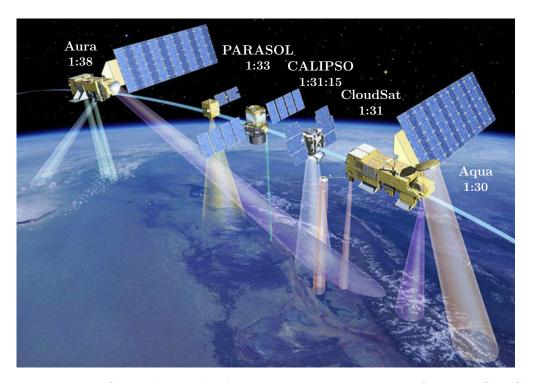


FIGURE 2.9 - Constellation du A-Train entre 2006 et 2009. Source: CNES.

2.2.3.2 Synergie avec les satellites de l'A-Train

Un autre aspect original de la mission PARASOL est de pouvoir combiner les informations recueillies par POLDER avec celles d'instruments complémentaires. Cette synergie est permise grâce à l'A-Train (Fig. 2.9), une constellation de satellites dédiés à l'observation de la Terre et à l'étude du climat. Appelé également « Afternoon Constellation », les satellites décrivent une orbite héliosynchrone à 705 km d'altitude qui passe l'équateur du sud vers le nord à 13h30. Ils ne sont séparés que de quelques minutes les uns des autres, ce qui leur permet des observations quasi-simultanées. PARASOL a fait parti du A-Train depuis son lancement jusqu'au 2 décembre 2009, date à laquelle son orbite a été descendue pour cause d'épuisement de son carburant. Pendant cette période, quatre autres satellites ont fait parti du A-Train, chacun avec sa propre mission scientifique :

- Aqua, lancée en 2002, est la première plateforme du programme. Dédiée principalement à l'étude du cycle de l'eau, elle intègre 6 instruments, dont MODIS et CERES.
- Aura est le deuxième satellite à rejoindre le A-Train en 2004. Ses objectifs sont l'étude de l'ozone, de la chimie atmosphérique et de la qualité de l'air.
- CALIPSO (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations) est venu compléter la formation en 2006. Le micro-satellite est consacré à l'étude des aérosols et des nuages, avec l'aide notamment du lidar CALIOP.
- CloudSat a été déployé en même temps que CALIPSO. Avec le radar CPR (Cloud Profiling Radar) à son bord, sa mission est d'analyser la relation entre les nuages et le climat.

2.3 Autres instruments satellitaires

2.3.1 MODIS

MODIS (Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer) est un instrument développé par l'agence spatiale américaine et dont l'objectif est l'observation à long terme de l'atmosphère, de l'océan, de la biosphère et des surfaces. Il s'agit d'un radiomètre à balayage transversal qui mesure la luminance. S'il ne permet pas de mesure multi-directionnelle, il a l'avantage de couvrir une large gamme spectrale, s'étendant sur 36 bandes du visible à l'infrarouge thermique (entre 405 nm et $14.4\,\mu\mathrm{m}$). Son balayage de $\pm55^{\circ}$ lui offre une fauchée de $2330\,\mathrm{km}$ perpendiculairement à la trace de l'orbite. La résolution au sol varie entre $250\,\mathrm{m}$ et $1\,\mathrm{km}$ en fonction de la bande spectrale considérée.

Avant de faire parti du A-Train à bord d'Aqua, MODIS a intégré la plateforme Terra, lancée en 1999. Ensemble, les deux radiomètres couvrent l'ensemble de la surface du globe en 1 à 2 jours.

Les observations MODIS permettent de déterminer un grand nombre de paramètres géophysiques pour décrire l'atmosphère, les surfaces continentales, la cryopshère et l'océan. Les données de niveaux 1 regroupent les mesures retranscrites en luminances ou en températures de brillance, les produits de niveaux 2 correspondent aux paramètres géophysiques restitués et les données de niveaux 3 se réfèrent aux statistiques journalières, hebdomadaires et mensuelles de ces paramètres.

Des analyses ont montré que le déclin de l'instrument MODIS/Terra entraîne une dérive de l'étalonnage, en particulier aux courtes longueurs d'onde, pour les produits de la Collection 5 (Polashenski et al., 2015). Ce biais pourrait avoir un impact sur la restitution des paramètres nuagueux comme le contenu en eau et l'épaisseur optique des nuages. Dans notre étude, seules les données de niveaux 1 et 2 de la Collection 5 obtenues à partir de MODIS/Aqua ont été utilisées pour les besoins de synergie avec POLDER. Ainsi, la dérive de l'étalonnage n'a pas d'influence sur nos analyses.

2.3.2 CALIOP

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 fournit des profils verticaux à haute résolution de l'atmosphère (30 à 60 m de résolution verticale). Avec son télescope d'un mètre de diamètre et son champ de vue de 135 μ rad, CALIOP est pourvu d'une fauchée étroite avec une tâche au sol de 90 m. Le laser Nd:YAG émet de la lumière polarisée linéairement à 532 et 1064 nm. Le signal rétrodiffusé par l'atmosphère et la surface est collecté par le télescope, relié à trois voies de réception. Une voie mesure la rétrodiffusion à 1064 nm et deux autres sont dédiées aux composantes orthogonale et parallèle de la polarisation à 532 nm. La combinaison de ces deux voies permet de calcul de la dépolarisation.

Le lidar est un instrument particulièrement adapté à l'analyse des situations multicouches finies. À partir des profils verticaux de rétrodiffusion, il est possible de caractériser l'altitude des couches d'aérosols et de nuages et de mesurer certaines de leurs propriétés.

2.3.3 CERES

Le radiomètre CERES (Clouds and the Earth s Radiant Energy System) a été conçu pour succéder à ERBE (Earth Radiation Budget Experiment) dont la mission était de mesurer le bilan radiatif de la Terre. CERES a été sélectionné pour participer à cinq missions spatiales : TRMM (Tropical Rainfall Measuring Mission - entre 1997 et 1998), Terra, Aqua, Suomi NPP (National Polar-orbiting Partnership - lancé en 2011) et JPSS-1 (Joint Polar Satellite System - lancement prévu en 2016).

L'instrument mesure l'intensité du rayonnement dans trois bandes spectrales larges : les courtes longueurs d'onde (de 0.3 à $5\,\mu\mathrm{m}$), la fenêtre infrarouge (de 8 à $12\,\mu\mathrm{m}$) et une voie mesurant la totalité du spectre du rayonnement montant (de 0.3 à $100\,\mu\mathrm{m}$). Le signal aux grandes longueurs d'onde n'étant pas directement mesuré, il est obtenu en soustrayant la contribution des courtes longueurs d'onde du signal total. Les réflectances sont ensuite converties en flux en appliquant un modèle de distribution angulaire. Une base de modèles a été constituée à partir des données collectées par ERBE. Afin de développer une meilleure contrainte angulaire, les plateformes Aqua et Terra disposent chacune de deux instruments CERES. Le premier effectue un balayage perpendiculaire à la trace de l'orbite. Le second permet des mesures dans une grande gamme d'angles de visée en balayant en élévation tout en opérant une rotation d'azimut. Ces observations ont permis d'étendre la base de modèles à d'autres types de scènes en utilisant des méthodologies d'identification de scène sophistiquées. Ces mêmes méthodologies sont appliquées pour sélectionner le modèle de distribution angulaire approprié.

Le champ de visée de CERES est déterminé par sa fonction d'étalement du point qui est une distribution en deux dimensions en forme de cloche. À bord d'Aqua et Terra, la résolution est de 20 km au nadir.

Chapitre 3

Télédétection des aérosols au-dessus des nuages

Ce troisième chapitre est consacré à l'observation par télédétection des aérosols audessus des nuages. Après avoir fait l'inventaire des méthodes existantes, nous montrerons que les observations POLDER disposent d'une sensibilité unique à la présence d'aérosols au-dessus des nuages. Nous détaillerons comment celles-ci peuvent-être exploitées pour mesurer les paramètres les plus importants requis pour l'estimation du forçage radiatif direct. Une analyse des erreurs d'inversion sera également présentée, ainsi que leur impact sur la valeur calculée du forçage. Enfin, nous commenterons nos résultats à l'aide de différents cas d'étude.

3.1 État de l'art

Ces dernières années, la communauté scientifique s'est fortement intéressée à la télédétection des aérosols au-dessus des nuages. Cet intérêt s'est traduit par le développement de plusieurs stratégies de restitution des propriétés des aérosols, exploitant différents types de mesures.

La méthode opérationnelle du lidar CALIOP (Winker et al., 2009) permet de déterminer des profils verticaux du coefficient d'extinction aérosol et de restituer l'épaisseur optique des aérosols au-dessus des nuages. La première étape consiste à détecter et à classer les différentes couches de nuages et d'aérosols (Vaughan et al., 2009; Omar et al., 2009; Liu et al., 2010), avant d'appliquer l'algorithme de resitution de l'extinction (S. A. Young et Vaughan, 2009). Celui-ci permet de déterminer le profil des coefficients de rétrodiffusion et d'extinction. À partir d'hypothèses sur la valeur du rapport lidar des différentes couches, il est possible de calculer l'épaisseur optique. En

plus de la méthode opérationnelle, deux méthodes alternatives ont été développées pour restituer les propriétés des aérosols au-dessus des nuages à partir des mesures CALIOP. Celle mise en œuvre par Hu et al. (méthode dite « de dépolarisation » - 2007) consiste à déterminer l'intégrale du coefficient de rétrodiffusion pour le nuage d'eau liquide à partir du rapport de dépolarisation puis à comparer cette quantité à celle qui est mesurée et atténuée par la couche d'aérosols. La seconde méthode, dite « du rapport de couleur », est basée sur le rapport des mesures à 1064 et 532 nm du nuage (Chand et al., 2008). En principe, ces deux méthodes sont plus précises que la version opérationnelle car elles ne nécessitent pas de contraindre le modèle d'aérosols. Ces deux méthodes présentent toutefois certaines limitations. Par exemple, la méthode du rapport de couleur présente peu de sensibilité aux aérosols du mode grossier alors que la méthode de dépolarisation nécessite des hypothèses sur la microphysique nuageuse. Ces deux méthodes nécessitent également l'utilisation de procédures d'étalonnage spécifiques, sujettes à validation.

Au-dessus des nuages, comme en ciel clair, les aérosols absorbants sont détectés à partir des réflectances mesurées dans l'UV proche par l'instrument passif OMI. La présence de ces aérosols entraîne un contraste entre les luminances mesurées à 354 et 388 nm dû à la variation spectrale de l'absorption des aérosols. L'index aérosol dans l'UV (UV-AI) est une quantité basée sur la différence entre le rapport des luminances mesurées à ces deux longueurs d'onde et celui calculé en considérant une atmosphère purement moléculaire et une surface lambertienne. Torres et al. (2012) ont développé une méthode déterminant simultanément l'épaisseur optique des aérosols au-dessus des nuages (ACAOT) et l'épaisseur optique du nuage (COT) à partir des mesures à 388 nm et de l'UV-AI. Cependant, celle-ci repose sur la « prescription » d'un modèle d'aérosols (distribution en taille, indice de réfraction) et sur des hypothèses sur l'altitude de la couche. Cette méthode a été utilisée sur des cas d'étude au large de la Namibie.

De l'UV au proche infrarouge, le signal rétrodiffusé par les nuages d'eau liquide peut-être considéré comme spectralement neutre. Ce n'est cependant pas le cas de l'absorption des aérosols, qui est plus forte aux faibles longueurs d'onde. Ainsi, lorsque qu'une couche d'aérosols absorbants est située au-dessus d'un nuage, celle-ci modifie la couleur apparente du nuage. La méthode du « Color-Ratio » (Jethva et al., 2013) utilise le rapport des luminances à 470 et 860 nm pour inverser simultanément l'ACAOT et le COT. À l'instar de la méthode précédente, elle nécessite de faire des hypothèses sur les propriétés des aérosols. Elle a été testée sur des évènements d'aérosols de feux de biomasse dans la région du sud-est de l'Océan Atlantique et sur des évènements de transports de poussières minérales d'origine du saharienne. Les modèles d'aérosols utilisés pour l'inversion sont bâtis en s'appuyant sur les produits des sites AERONET les plus proches.

Plus récemment, Meyer et al. (2015) ont proposé une autre approche pour caractériser les aérosols au-dessus des nuages, à partir des données MODIS. Celle-ci permet de resituer l'ACAOT, le COT et le rayon effectif des gouttelettes d'eau du nuage (CER) à partir des mesures acquises dans 6 bandes spectrales comprises entre 470 et 2100 nm.

À la manière de la méthode du Color-Ratio, la sensibilité à l'ACAOT et au COT est apportée par l'amplitude et la variation spectrale du signal entre 470 et 1240 nm. Les mesures à 1240 et 2100 nm apportent la sensibilité au CER. En considérant deux modèles d'aérosols, cette méthode a été appliquée aux panaches d'aérosols de feux de biomasse transportés au-dessus des nuages au sud-est de l'Océan Atlantique.

Si les instruments passifs offrent une meilleure couverture spatiale que les instruments actifs, les méthodes présentées ci-dessus reposent sur des hypothèses fortes. La prescription du modèle d'aérosols rend leur application à l'échelle globale complexe. De plus, le modèle d'aérosols impose la valeur de l'albédo de simple diffusion (SSA), qui est un paramètre critique pour l'estimation de l'effet direct des aérosols. Enfin, ces différentes techniques étant basées sur l'absorption des aérosols, elles sont peu sensibles aux aérosols faiblement absorbants.

Par ailleurs, les observations passives polarisées sont sensibles à la présence d'aérosols au-dessus des nuages. Waquet et al. (2009) ont développé une méthode, basée sur l'approximation de la diffusion primaire, qui utilise les mesures du polarimètre POLDER. Elle a permis de déterminer l'épaisseur optique d'une couche d'aérosols émis par les feux de biomasse au-dessus de stratocumulus du sud-est de l'Océan Atlantique. Hasekamp (2010) a évalué la contribution des mesures de luminances totales et polarisées pour restituer simultanément les propriétés des aérosols et des nuages. Le polarimètre RSP (Research Scanning Polarimeter) a observé des aérosols de pollution au-dessus des nuages lors de la campagne MILAGRO au Mexique au printemps 2006. L'inversion de ces mesures a permis de déterminer les propriétés optiques des aérosols et la distribution en taille des gouttelettes des nuages (Knobelspiesse et al., 2011). Dans la suite de ce chapitre, nous montrerons comment la présence d'aérosols modifie, de façon significative, la signature angulaire apparente du rayonnement polarisé rétrodiffusé par les nuages d'eau liquide. Nous présenterons ensuite une méthode combinant les sensibilités complémentaires aux propriétés des aérosols des mesures polarisées et des luminances totales.

3.2 Détermination des propriétés de diffusion des aérosols à partir des mesures de luminance polarisée

3.2.1 Sensibilité de la mesure de luminance polarisée

Les mesures en polarisation ont une sensibilité différente des mesures de luminances totales aux nuages d'eau liquide. La figure 3.1 présente des compositions colorées de luminances (à gauche) et de luminances polarisées (à droite) obtenues à partir de



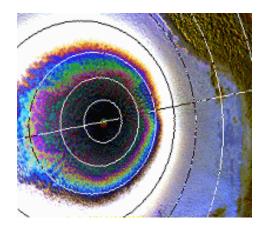


FIGURE 3.1 – Compositions colorées observées par ADEOS-1/POLDER au-dessus de nuages d'eau liquide obtenues à partir des canaux à 443, 670 et 865 nm en luminance totale (à gauche) et en luminance polarisée (à droite). *Source : CNES.*

POLDER au-dessus d'une scène nuageuse. Les cercles concentriques représentent les iso-angles de diffusion par pas de 10° et la ligne droite, le plan principal solaire. En luminance totale, les nuages rétrodiffusent fortement le rayonnement, ce qui produit un signal intense blanc. Son amplitude est modulée par l'épaisseur optique du nuage dans le domaine visible et par la distribution en taille des gouttelettes aux courtes longueurs d'onde de l'infrarouge. Sur l'acquisition en polarisation, on observe une forte signature angulaire du signal, caractéristique de la diffusion du rayonnement par les gouttelettes sphériques. La structure principale est le pic de polarisation autour de 140° qui forme un cercle blanc sur la figure 3.1. Ce pic, qu'on appelle l'arc-en-ciel du nuage, est produit par la diffusion préférentielle du rayonnement par les larges particules sphériques dans cette direction. On discerne également des irisations aux plus grands angles de diffusion qui témoignent de la présence d'arcs surnuméraires dont la position varie avec la longueur d'onde. Le signal mesuré pour des angles de diffusion inférieurs à 130° est faible et en grande partie dominé par la diffusion moléculaire (couleur bleue). La distribution en taille des gouttelettes, et particulièrement leur rayon effectif, influe sur l'intensité et la position des arcs (Goloub et al., 2000; Goloub, 2000; Riedi, 2001). En revanche, comme la polarisation est sensible aux premiers ordres de diffusion, la luminance polarisée sature rapidement lorsque l'épaisseur optique de nuage croit. Ainsi, le signal mesuré ne dépend plus de l'épaisseur optique du nuage dès lors que celle-ci est supérieure à 3.

La présence d'aérosols au-dessus des nuages d'eau liquide affecte le signal polarisé mesuré au sommet de l'atmosphère. La figure 3.2 représente les luminances polarisées simulées à partir du code SOS pour des scènes nuageuses, avec et sans aérosol au-dessus. Nous distinguerons ici le cas des aérosols du mode fin (rayon granulométrique de $0.10\,\mu m$) de celui d'aérosols non-sphériques du mode grossier comme les poussières minérales. Pour le nuage seul, nous retrouvons les structures décrites précédemment, à savoir, le pic de polarisation correspondant à l'arc du nuage à 140° et un signal faible

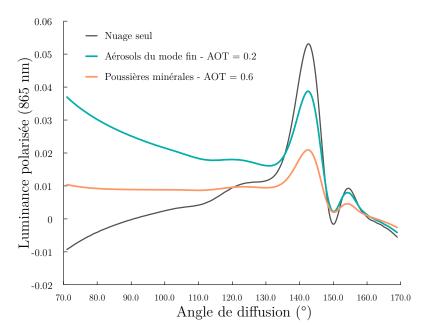


FIGURE 3.2 – Luminances polarisées à 865 nm modélisées à partir du code SOS pour un cas de nuage seul (en noir), d'aérosols du mode fin au-dessus du nuage (en vert) et de poussières minérales non-sphériques au-dessus du nuage (orange). Les gouttelettes du nuage ont un rayon effectif (CER) de $10\,\mu m$ et l'épaisseur optique du nuage (COT) est de 10.

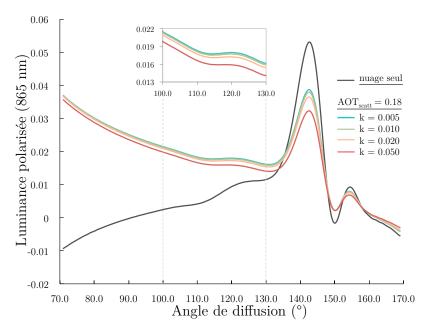


FIGURE 3.3 – Luminances polarisées à 865 nm modélisées à partir du code SOS. Le cas du nuage seul (COT=10, CER=10 μ m) est représenté en noir et les cas avec aérosols du mode fin (rayon granulométrique de $0.10 \,\mu$ m) au-dessus en couleurs.

en dessous de 130°. Lorsque des aérosols sont situés au-dessus du nuage, on observe une atténuation de l'intensité de l'arc. Cette diminution du signal dépend de l'épaisseur optique de la couche d'aérosols. L'épaisseur optique des aérosols du mode fin décroit rapidement avec la longueur d'onde. Ainsi, on observera une variation spectrale de l'atténuation pour ces aérosols, ce qui entraîne une modification de la couleur apparente de l'arc. Pour des angles de diffusion inférieurs à 130°, on constate un effet différent selon le type d'aérosols. Malgré une épaisseur optique plus forte pour les poussières minérales, le signal modélisé est plus élevé pour les aérosols du mode fin. En effet, la diffusion par les petites particules polarise plus efficacement le rayonnement que les particules non-sphériques du mode grossier à ces angles de diffusion.

Des simulations ont été réalisées pour des aérosols du mode fin avec différents niveaux d'absorption (Fig. 3.3). L'épaisseur optique de diffusion aérosols AOT_{scatt} est fixée à 0.18. En augmentant la partie imaginaire de l'indice de réfraction k, on fait varier l'épaisseur optique d'absorption AOT_{abs} de 0.009 (k=0.005) à 0.09 (k=0.05). Pour des angles de diffusion inférieurs à 130°, l'effet de l'absorption est faible devant la création de polarisation due à la diffusion. Par conséquent, la modification du signal du nuage observée pour $\Theta < 130^\circ$ provient essentiellement des processus de diffusion. Les observations passives polarisées constituent ainsi une alternative à l'utilisation des mesures de luminances totales qui sont à la fois sensibles aux propriétés des nuages et à l'absorption des aérosols situés au-dessus.

3.2.2 Méthode d'inversion

Waquet et al. (2013a,b) ont développé une méthode pour inverser les luminances polarisées et restituer l'épaisseur optique des aérosols au-dessus des nuages d'eau liquide (AOT) et leur exposant d'Angström. Celle-ci tire parti des deux effets décrits précédemment, à savoir, la création de polarisation pour $\Theta < 130^{\circ}$ liée aux aérosols du mode fin et la diminution de l'intensité de l'arc du nuage pour les poussières minérales. La méthode consiste à comparer les luminances polarisées mesurées à 670 et 865 nm avec des luminances polarisées pré-calculées réunies dans une table de référence (Look Up Table - LUT). Ces luminances polarisées ont été modélisées à partir du code SOS en considérant différentes combinaisons de modèles d'aérosols et de nuages. Les 7 modèles d'aérosols suivent une distribution en taille lognormale. Six d'entre-eux sont des aérosols sphériques du mode fin avec un rayon granulométrique r_q compris entre 0.06 et $0.16\,\mu\mathrm{m}$ et un indice de réfraction de 1.47-0.01i. Le dernier correspond à un modèle de poussières minérales non-sphériques ayant un indice de réfraction de 1.47 - 0.0007i. Concernant les nuages, plusieurs distributions en taille des gouttelettes ont été considérées afin de tenir compte de la variation de l'intensité et de la position de l'arc du nuage. Les propriétés des aérosols et des nuages utilisées pour modéliser les LUT sont résumées dans le tableau 3.1.

	Aérosols		Nuages	
	Mode fin	Poussière minérale		
Distribution verticale	Couche gaussienne à une altitude moyenne de 3 km		Couche homogène entre 0 et 0.75 km	
Distribution en taille	lognormale avec $r_g = 0.06$ à $0.16 \mu \text{m}$ (par pas de $0.02 \mu \text{m}$) et $\sigma_f = 0.4$	lognormale à deux modes avec $r_{eff,fine} = 0.35 \mu \text{m},$ $r_{eff,coarse} = 2.55 \mu \text{m}$ et $\sigma_f = 0.4$	loi de gamma avec $r_{eff} = 5$ à $26\mu \text{m}$ (par pas de $1\mu \text{m}$) et $v_{eff} = 0.06$	
Indice de réfraction	1.47 - 0.01i	1.47 - 0.0007i	$m_{r,670nm} = 1.331$ $m_{r,865nm} = 1.330$	

Table 3.1 – Propriétés des aérosols et des nuages utilisées pour les LUT en polarisation.

Un schéma décrivant les différentes étapes de l'algorithme est représenté en figure 3.4. Les données d'entrées sont les luminances polarisées multidirectionnelles mesurées par POLDER à 670 et 865 nm à l'échelle $6 \times 6 \,\mathrm{km^2}$ ainsi que le rayon effectif des gouttelettes du nuage restitué à partir de MODIS (Nakajima et King, 1990). Cette dernière information est utilisée pour sélectionner le modèle de nuage. Chacun des trois tests consiste à sélectionner l'épaisseur optique et le modèle d'aérosols permettant de minimiser l'écart ε entre le signal mesuré L_p^{mes} et le signal modélisé L_p^{LUT} :

$$\varepsilon = \sqrt{\frac{1}{N_{\Theta}N_{\lambda}} \sum_{i=1}^{N_{\Theta}} \sum_{j=1}^{N_{\lambda}} \left[L_{p,ij}^{mes}(\Theta) - L_{p,ij}^{LUT}(\Theta) \right]^{2}}$$
(3.1)

où N_{Θ} et N_{λ} désignent respectivement le nombre de géométries d'observation et de bandes spectrales. Le premier test est effectué sur toutes les géométries disponibles parmi les 6 modèles d'aérosols du mode fin uniquement. Cette étape vise à déterminer s'il est possible de distinguer le type d'aérosol (aérosol du mode fin ou poussière minérale). À l'issue de ce test, si l'épaisseur optique AOT_{test1} est inférieure à 0.1, le signal mesuré ne contient pas suffisamment d'information et le modèle d'aérosols ne sera choisi que parmi les 6 du mode fin. Au contraire, si $AOT_{test1} \geq 0.1$, le modèle d'aérosols sera sélectionné parmi les 7. Ensuite, l'épaisseur optique des aérosols est déterminée à partir des mesures obtenues pour $\Theta \leq 130^{\circ}$ si le modèle correspond au mode fin. Or, cette partie du signal est essentiellement sensible à l'épaisseur optique de diffusion des aérosols. Ceci implique que l'épaisseur optique d'extinction est déduite à partir de l'hypothèse faite sur l'albédo de diffusion des aérosols. Ici, il est notamment contrôlé par la partie imaginaire de l'indice de réfraction k, fixée à 0.01. En revanche, si le modèle de poussières minérales est retenu, l'épaisseur optique des aérosols sera déterminée à partir de toutes les géométries disponibles.

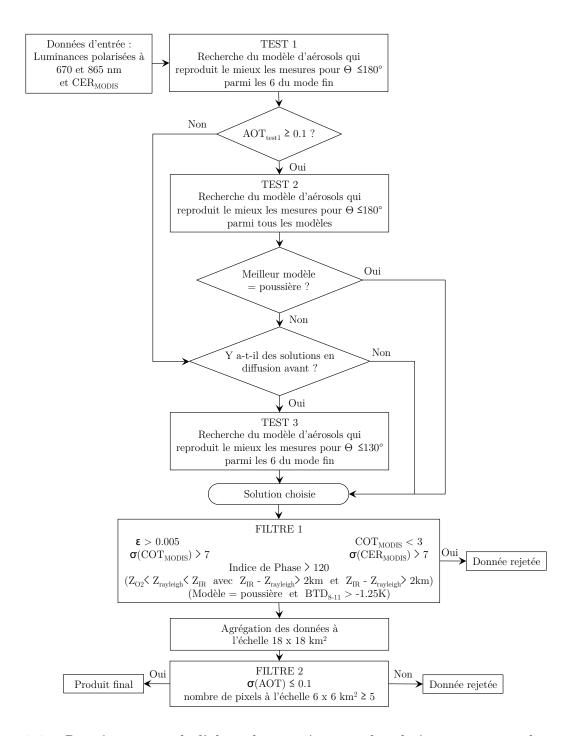


FIGURE 3.4 – Représentation de l'algorithme opérationnel utilisé pour inverser les propriétés des aérosols au-dessus des nuages à partir des mesures polarisées POLDER. Adapté de Waquet et al. (2013a).

Afin de garantir la qualité de la restitution du paramètre final, différents filtres sont appliqués aux données. Tout d'abord, les inversions ne permettant pas de reproduire de façon satisfaisante le signal mesuré sont rejetées ($\varepsilon > 0.005$). Dans un second temps, le filtre sur l'épaisseur optique du nuage « MODIS » permet d'assurer la saturation du rayonnement polarisé diffusé par le nuage. La variabilité des paramètres du nuage est ensuite évaluée, pour chaque pixel POLDER (6 x 6 km²), à partir des restitutions MODIS à plus haute résolution $(1 \times 1 \text{ km}^2)$. Lorsque la déviation standard σ sur 36 pixels de l'épaisseur optique du nuage ou du rayon effectif des gouttelettes est supérieure à 7, la donnée est écartée afin de ne conserver que les nuages les plus homogènes. Enfin, plusieurs critères permettent d'éliminer les pixels contaminés par les cirrus. Le premier consiste à filtrer selon l'indice de phase thermodynamique estimé à partir des mesures POLDER et MODIS (Riedi et al., 2010). Le second est basé sur les altitudes du sommet du nuage restituées par MODIS à partir de l'infrarouge thermique (Menzel et al., 2010) et par POLDER à partir de la méthode oxygène (Vanbauce et al., 2003) et de la méthode Rayleigh (Goloub et al., 1994). En effet, la présence de cirrus au-dessus de nuage d'eau liquide affecte différemment ces trois estimations de la pression (Waquet et al., 2009). Malgré ces filtres, certains cas de cirrus continuaient à être interprétés comme des poussières minérales au-dessus des nuages, comme le montre la carte de gauche de la figure 3.5. Les exposants d'Angström ont été produits de Mars à Mai 2008 et filtrés d'après les critères définis ci-dessus. Aux latitudes supérieures à 60°N, on observe des valeurs moyennes proche de 1.2. Elles indiquent que la méthode a sélectionné le modèle de poussières (exposant d'Angström de 0.36) pour une partie des observations. Pour ces évènements, la différence de températures de brillance (BTD) mesurée par MODIS à 8.6 et $11 \,\mu\mathrm{m}$ est supérieure à -1.25 K (Fig. 3.5, carte du milieu). Comme l'ont montré P. Zhang et al. (2006) et Hansell et al. (2007), la BTD permet de distinguer efficacement les cirrus des poussières minérales, ces dernières étant associées à des valeurs plus basses. Dans la dernière version de l'algorithme (Waquet et al., 2013b), les évènements dont la BTD est supérieure à -1.25 K sont rejetés si le modèle d'aérosols retenu correspond aux poussières. La carte de droite de la figure 3.5 représente les exposants d'Angström obtenus après application de ce dernier critère.

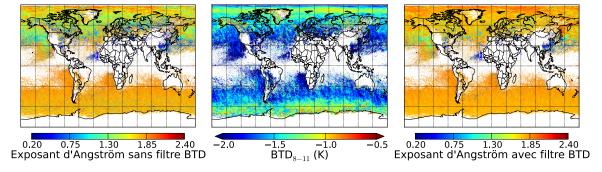


FIGURE 3.5 – Effet du filtre sur la différence de température de brillance (BTD) à 8 et $11\,\mu\mathrm{m}$ sur l'inversion de l'exposant d'Angström des aérosols au-dessus des nuages de mars à mai 2008.

La dernière étape consiste à dégrader la résolution du produit en agrégeant les résultats à l'échelle $18 \times 18 \,\mathrm{km^2}$. On ne garde alors que les pixels dont la déviation standard de l'épaisseur optique des aérosols est inférieure à 0.1 et qui contiennent plus de 4 inversions à l'échelle $6 \times 6 \,\mathrm{km^2}$. Ce dernier critère permet d'exclure les bords de nuage où la restitution de l'épaisseur optique des aérosols est plus incertaine à cause des effets 3D des nuages.

3.2.3 Principaux résultats

La méthode d'inversion décrite précédemment a permis de déterminer, pour la première fois, les propriétés des aérosols au-dessus des nuages à l'échelle globale (Waquet et al., 2013b). La figure 3.6 montre les résultats obtenus pour l'année 2006, en terme d'épaisseur optique des aérosols (AOT) à 865 nm, d'exposant d'Angström et de nombre d'évènements. L'exposant d'Angström a été calculé à partir des moyennes d'épaisseurs optiques à 670 et 865 nm.

Les aérosols issus des feux de biomasse sont plutôt des particules de petites tailles, généralement associées à un exposant d'Angström supérieur à 2. De juin à octobre, de nombreux évènements de petits aérosols ont été détectés au-dessus des nuages. Ils ont traversé le sud-est de l'Océan Atlantique et une épaisseur optique de l'ordre 0.2 a été mesurée. Comme expliqué dans la section 1.4.2, dans la moitié sud du continent africain, les feux de végétations produisent de grandes quantités d'aérosols qui sont ensuite transportés vers l'Océan où se situe une couche quasi permanente de nuages à basse altitude. Par ailleurs, une partie des aérosols de feux de biomasse est transportée vers l'ouest jusqu'à l'Océan Indien (Swap et al., 2003; Stein et al., 2003). Ces aérosols ont été observés avec POLDER entre la côte sud-est africaine et Madagascar. En été, des aérosols ont également été détectés au-dessus des nuages sur la côte nord-est américaine et en mer d'Okhotsk, provenant respectivement de feux de biomasse californienne et sibérienne.

Les cartes attestent d'un transport important d'aérosols de pollution au-dessus des nuages, dans l'hémisphère nord, avec des exposants d'Angström de l'ordre de 1.6. On notera, en particulier, les évènements identifiés dans le nord de l'Océan Pacifique, associés à de fortes valeurs d'épaisseur optique (AOT>0.1). Ces aérosols de pollution, en provennance de l'est de l'Asie, traversent l'Océan Pacifique vers l'Amérique du Nord en été et au printemps.

Le coefficient d'Angström du modèle de poussières utilisé pour les inversions vaut 0.36. Sur la deuxième carte de la figure 3.6, nous distinguons 3 grandes régions où des poussières sont détectées au-dessus des nuages. Des poussières sahariennes sont transportées à l'est de l'Océan Atlantique Tropical. Des poussières provenant de la corne de l'Afrique et de la péninsule arabique sont également détectées au niveau de la

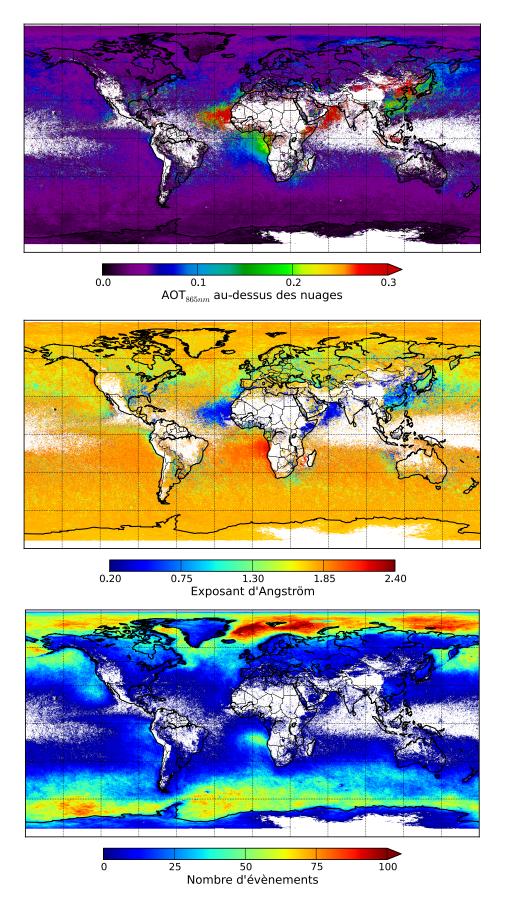


FIGURE 3.6 – Distribution des aérosols au-dessus des nuages en 2006. De haut en bas : épaisseur optique des aérosols à 865 nm, exposant d'Angström et nombre d'évènements.

mer d'Arabie. Enfin, au printemps, des aérosols émis par des déserts du sud de l'Asie sont fréquemment détectés au-dessus des nuages dans le nord de l'Océan Pacifique.

De plus, la présence d'aérosols au-dessus des nuages a été mise en évidence au pôle nord, au printemps 2008 (Fig. 3.7). À cette saison, la région arctique est recouverte d'une brume d'aérosols d'origine anthropique : c'est le phénomène de l'« Arctic Haze » (Garrett et Verzella, 2008). Des mesures aéroportées indiquent que ces particules proviennent de la pollution asiatique et des feux de biomasse en Europe et en Sibérie (Quennehen et al., 2012). Les valeurs d'exposant d'Angström mesurées par POLDER au-dessus des nuages (autour de 2.0) suggèrent également des aérosols issus de l'activité humaine. En 2008, les épaisseurs optiques observées sont particulièrement élevées pour cette région (de l'ordre de 0.15). Ce phénomène pourrait être causé par le démarrage précoce de la saison des feux en Sibérie, à l'origine d'un transport plus efficace des aérosols vers les hautes latitudes (Warneke et al., 2009).

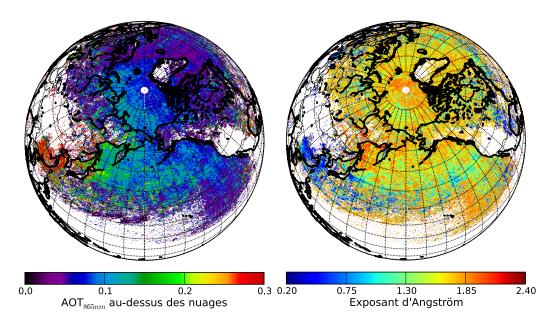


FIGURE 3.7 – Épaisseur optique et exposant d'Angström des aérosols au-dessus des nuages en Arctique et au nord de l'océan Pacifique, de mars à mai 2008 .

3.3 Restitution de l'absorption des aérosols à partir des luminances totales

3.3.1 Sensibilité de la luminance totale à l'absorption des aérosols

Au-dessus des nuages d'eau liquide, la luminance polarisée provient essentiellement de la diffusion du rayonnement par les aérosols. Pour les particules du mode fin, la méthode décrite précédemment est sensible à l'épaisseur optique de diffusion. La détermination de l'épaisseur optique d'exctinction dépend donc du choix de l'absorption des aérosols. Au contraire de la polarisation, l'absorption des aérosols affecte fortement la luminance totale mesurée par satellite. L'instrument POLDER présente l'avantage de mesurer les deux, à plusieurs longueurs d'onde et pour différents angles de visée. Nous montrons maintenant comment les utiliser de façon complémentaire pour déterminer les propriétés 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 (distribution en taille, composition chimique, forme). Ainsi, la présence d'aérosols au-dessus des nuages entraîne une modification de la luminance spectrale du signal au sommet de l'atmosphère. Des simulations de la luminance totale à 490 et 865 nm ont été réalisées avec le code de « l'adding-doubling ». La figure 3.8 représente le rapport des luminances à 490 et 865 nm en fonction de la luminance à 865 nm. Des situations d'aérosols au-dessus des nuages ont été modélisés pour différentes valeurs d'épaisseur optique du nuage. Comme pour la figure 3.3, l'épaisseur optique de diffusion des aérosols a été fixée ($AOT_{scatt.865nm} = 0.18$) et l'épaisseur optique d'absorption varie avec la partie imaginaire de l'indice de réfraction k. Nous avons choisi un indice de réfraction des aérosols identique aux deux longueurs d'onde. La figure 3.8 souligne l'augmentation du contraste spectral lorsque l'absorption des aérosols croit : comme l'épaisseur optique d'absorption des aérosols est plus forte aux courtes longueurs d'onde, le rapport des luminances décroit lorsque l'absorption des aérosols augmente. 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.

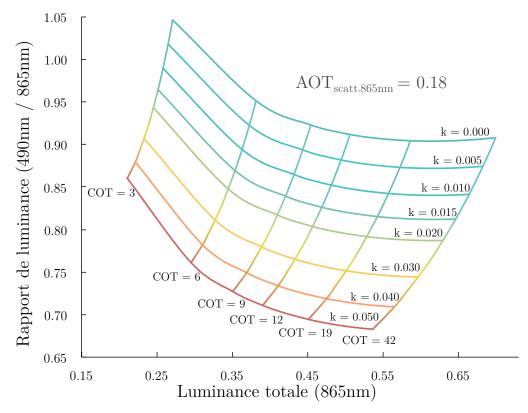


FIGURE 3.8 – Rapport des luminances à 490 et 865 nm en fonction de la luminance à 865 nm. Les modélisations ont été réalisées à partir du code de l'adding-doubling pour une couche d'aérosols du mode fin (rayon granulométrique de $0.10\,\mu\mathrm{m}$) au-dessus d'un nuage (gouttelettes de rayon effectif de $10\,\mu\mathrm{m}$). Plusieurs épaisseurs optiques du nuage (COT) et épaisseurs optiques d'absorption des aérosols ont été considérées. $[\theta_s, \theta_v, \varphi_r] = [41.3^\circ, 41.3^\circ, 180^\circ]$.

3.3.2 Méthode d'inversion

La particularité de la méthode présentée ici réside dans la combinaison des informations apportées par les luminances totales et polarisées mesurées par POLDER. Cette combinaison permet de restituer l'épaisseur optique des aérosols au-dessus des nuages, leur albédo simple de diffusion (SSA) et l'épaisseur optique du nuage (Peers et al., 2015).

La première étape consiste à déterminer la taille des aérosols et leur épaisseur optique de diffusion à partir des mesures polarisées à 670 et 865 nm. Pour cela, nous utilisons la méthode décrite précédemment (section 3.2.2). L'épaisseur optique de diffusion est recalculée à partir de l'albédo de simple diffusion du modèle d'aérosols utilisé pour les LUT en polarisation :

$$\tau_{scatt,\lambda} = SSA_{\lambda,k_{pol}} \tau_{ext,\lambda,k_{pol}} \tag{3.2}$$

où τ_{scatt} est l'épaisseur optique de diffusion des aérosols, τ_{ext} , l'épaisseur optique d'extinction restituée à partir de la polarisation, SSA, l'albédo de simple diffusion du modèle d'aérosols dont la partie imaginaire de l'indice de réfraction est k_{pol} et λ la longueur d'onde.

L'objectif de la seconde étape est de 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. Comme pour la première étape, la méthode consiste à comparer la luminance mesurée avec la luminance calculée à partir des LUT. Les modèles d'aérosols et de nuages utilisés ici sont détaillées dans le tableau 3.2. Les modèles d'aérosols sont décrits par les distributions en taille utilisées précédemment, pour plusieurs parties imaginaires de l'indice de réfraction k. Pour les aérosols du mode fin, k varie peu entre les deux longueurs d'onde utilisées. Pour ce type d'aérosols, la partie imaginaire sera indentique à 490 et 865 nm et comprise entre 0.00 et 0.05. En revanche, l'indice imaginaire des poussières présente une forte variation spectrale due à la présence d'oxyde de fer absorbant dans le bleu et l'UV. Par conséquent, k est fixé à 0.0007 à $865\,\mathrm{nm}$ et l'absorption des poussières est évaluée à $490\,\mathrm{nm}$ avec une valeur de k comprise entre 0.000 et 0.004. La luminance totale à 490 et 865 nm étant peu sensible à la distribution en taille des gouttelettes d'eau des nuages (Rossow et al., 1989), un seul modèle de nuage, avec un rayon effectif à $10 \,\mu \text{m}$, est considéré. Enfin, la réflexion spéculaire du rayonnement solaire sur l'océan (le sunglint) contribue à la luminance au sommet de l'atmosphère lorsque le nuage est optiquement fin. Cette contribution est prise en compte dans les LUT en utilisant le modèle de surface de Cox et Munk (1954) et en considérant des vitesses de vent de surface entre 2.0 et 15.0 m.s⁻¹. La méthode développée ici est donc restreinte aux situations océaniques. Les données d'entrée sont les luminances multidirectionnelles (résolution $6 \times 6 \,\mathrm{km^2}$), l'épaisseur optique de diffusion, le modèle d'aérosols déterminés au cours de l'étape précédente ansi que la vitesse du vent de surface issue de réanalyses météorologiques. La solution retenue est celle qui minimise

	Aérosols		Nuages	
	Aérosol fin	Poussière minérale		
Distribution verticale	Couche homogène entre 2 et $3 \mathrm{km}$		Couche homogène entre 0 et 1 km	
Distribution en taille	lognormale avec $r_g = 0.06$ à $0.16\mu \text{m}$ (par pas de $0.02\mu \text{m}$) et $\sigma_f = 0.4$	lognormale à deux modes avec $r_{eff,fine} = 0.35 \mu \text{m},$ $r_{eff,coarse} = 2.55 \mu \text{m}$ et $\sigma_f = 0.4$	loi de gamma avec $r_{eff} = 10 \mu \text{m}$ et $v_{eff} = 0.06$	
Indice de réfraction	1.47 - k.i avec $k = 0.00$ à 0.005 (par pas de 0.0025)	$1.47 - k.i$ avec $k_{865nm} = 0.0007$ et $k_{490nm} = 0.0$ à 0.004 (par pas de 0.0005)	$m_{r,490nm} = 1.338$ $m_{r,865nm} = 1.330$	

Table 3.2 – Description des modèles d'aérosols et de nuages utilisées pour le calcul des LUT en luminances.

le terme d'écart ε . Par cohérence avec la méthode opérationnelle POLDER en ciel clair, l'exposant d'Angström est calculé à partir des épaisseurs optiques à 670 et 865 nm.

3.4 Étude de sensibilité

3.4.1 Validité de l'algorithme

La méthode d'inversion présentée ci-dessus repose sur plusieurs hypothèses dont nous analyserons les impacts sur la restitution des propriétés des aérosols et des nuages. Pour cela, des observations POLDER ont été modélisées avec les codes de transfert radiatif utilisés pour générer les LUT. Ces simulations ont ensuite été utilisées comme données d'entrée de l'algorithme.

Nous commençons par étudier les hypothèses concernant l'indice de réfraction des aérosols.

1. Afin de déterminer l'épaisseur optique de diffusion, on suppose que les mesures polarisées sont peu sensibles à l'absorption des aérosols au-dessus des nuages. Cette approximation devrait être moins valide lorsque la couche d'aérosols est très absorbante (épaisseur optique forte et albédo de simple diffusion faible). Les biais sur l'épaisseur optique de diffusion des aérosols peuvent ensuite affecter la restitution de l'albédo de simple de diffusion.

2. La seconde hypothèse concerne la partie réelle de l'indice de réfraction des aérosols m, qui est fixée à 1.47 pour les LUT.

Afin d'évaluer l'impact des approximations 1 et 2, des simulations ont été réalisées pour trois modèles d'aérosols absorbants et pour des épaisseurs optiques entre 0 et 0.6 à 865 nm. Leur indice de réfraction est de 1.42 - 0.03i, 1.47 - 0.03i et 1.52 - 0.03icorrespondant à des albédos de simple diffusion respectivement de 0.735, 0.772 et 0.801 à 865 nm. Les parties réelles des indices sont représentatives de la variabilité observée parmi les aérosols du mode fin (Dubovik et al., 2002). Les aérosols ont un rayon granulométrique de $0.10\,\mu\mathrm{m}$ et leur altitude moyenne est de 3 km. La couche nuageuse a une épaisseur optique de 10, le rayon effectif des gouttelettes est de $10 \,\mu m$ et l'altitude du sommet est à 0.75 km. Enfin, nous avons évalué l'impact sur le calcul du forçage direct des aérosols (DRE). Les flux ont été modélisés avec le code de transfert radiatif GAME à partir des propriétés des scènes de référence et de celles déterminées par la méthode. La figure 3.9 représente les propriétés des aérosols et des nuages de l'état de référence (en gris) et celles restituées par l'algorithme (en vert) en fonction de l'épaisseur optique des aérosols. La colonne du milieu (n = 1.47 - 0.03i) montre les biais dûs à l'approximation sur les luminances polarisées. Les colonnes de gauche et droite (n = 1.42 - 0.03i) et 1.52 - 0.03i) présentent également l'effet du choix sur la partie réelle de l'indice de réfraction.

- Les deux premières lignes correspondent à l'épaisseur optique d'extinction (AOT) et de diffusion des aérosols (AOT_{scatt}). Pour m=1.42 et 1.47, l'algorithme sous-estime l'épaisseur optique des aérosols. Cette erreur provient de la sous-estimation de l'épaisseur optique de diffusion pendant la première phase de l'inversion (mesures polarisées). Pour une AOT < 0.2, le biais est de l'ordre de 20%. Dans le cas d'évènements intenses (AOT ≈ 0.6), l'AOT est sous-estimée de $\sim 27\%$ pour m=1.42 et $\sim 24\%$ pour m=1.47. En revanche, l'AOT est surestimée pour m=1.52. Notons néanmoins que la méthode retrouve un modèle d'aérosols avec un rayon granulométrique plus grand (0.12 μ m au lieu 0.10 μ m). Nous observons une surestimation maximum de l'épaisseur optique des aérosols ($\pm 25\%$) pour AOT = 0.2. Pour des valeurs plus fortes, l'erreur sur l'AOT d'extinction décroit (compensation avec le biais sur l'absorption des aérosols). Pour une AOT = 0.6, la surestimation est d'environ 17%.
- Les biais sur l'épaisseur optique d'absorption (AOT_{abs}) et sur l'albédo de simple diffusion (SSA) sont rapportés respectivement sur la troisième et la quatrième ligne de la figure 3.9. Il est intéressant de noter que les biais sur l'épaisseur optique d'absorption sont faibles, en dépit de l'erreur sur l'épaisseur optique de diffusion. Ceci montre que la deuxième étape de l'algorithme (utilisant les luminances totales) est bien sensible à l'épaisseur optique d'absorption des aérosols. Par conséquent, la méthode compense l'erreur sur l'épaisseur optique de diffusion des aérosols par un biais sur l'albédo de simple diffusion : un bais négatif (positif) sur AOT_{scatt} entraîne une sous-estimation (surestimation) de l'albédo de diffusion. Pour une

AOT= 0.6, un biais de -0.055 est observé sur l'albédo de simple diffusion pour m=1.42 et 1.47. Le biais atteint +0.033 pour m=1.52.

- Les graphiques de la cinquième ligne représentent l'épaisseur optique du nuage (COT). L'impact de nos hypothèses apparaît faible sur l'épaisseur optique du nuage restituée (le biais maximum observé est de ± 0.3).
- − La dernière ligne montre la variation de l'effet direct des aérosols (DRE) en fonction de l'épaisseur optique des aérosols. Le forçage calculé à partir des propriétés restituées par l'algorithme est proche de celui obtenu à partir des propriétés des scènes de référence. Ceci peut-être expliqué par la bonne estimation de l'épaisseur optique d'absorption des aérosols par notre méthode. Comme le montre l'équation 1.39, l'épaisseur optique d'absorption est un paramètre déterminant pour le calcul de l'effet direct lorsque l'albédo du nuage est fort. L'écart le plus important (+9.7 W.m⁻²) a été obtenu pour une AOT = 0.6 et m = 1.52. Dans les autres situations, le biais est inférieur à ±6.4W.m⁻² pour AOT < 0.2 et inférieur à ±1W.m⁻² pour AOT < 0.1.
- 3. Nous avons ensuite examiné l'impact du choix de la distribution en taille des aérosols du mode grossier. Le modèle de poussières minérales considéré dans notre inversion est défini par une distribution bimodale correspondant à un exposant d'Angström de 0.36. Les luminances totale et polarisée ont été modélisées pour des cas d'aérosols ayant des exposants d'Angström de 0.02 et 0.6, avec une épaisseur optique de 0.6. En dépit de l'erreur sur l'épaisseur optique (de l'ordre de 24%), l'albédo de simple diffusion à 490 nm est restitué avec un biais inférieur à 1%.
- 4. La dernière hypothèse sur les aérosols à avoir été analysée, concerne l'impact la distribution verticale de la couche d'aérosols. Le signal a été simulé pour deux altitudes du sommet de la couche, de 4 et 6 km. Dans les deux cas, les propriétés des aérosols et des nuages ont été correctement restituées par la méthode. En polarisation, la diffusion du rayonnement par les molécules affecte peu les longueurs d'onde utilisées pour l'inversion (670 et 865 nm). Les luminances polarisées sont donc peu sensibles à la distribution verticale des aérosols tant que les couches d'aérosols et de nuages sont distinctes.
- 5. Concernant les hypothèses sur les nuages, nous avons testé l'impact de ne considérer qu'une seule distribution en taille des gouttelettes de rayon effectif de $10 \,\mu\mathrm{m}$. Des luminances ont été simulées pour des rayons effectifs de 6 et $20 \,\mu\mathrm{m}$ et une épaisseur optique de nuage de 10. L'hypothèse sur le rayon effectif des gouttelettes entraîne un biais de $\pm 10\%$ sur l'épaisseur optique du nuage, conformément à l'étude de (Rossow et al., 1989). Cependant, le rayon effectif des gouttelettes est compris entre 8 et $16 \,\mu\mathrm{m}$ pour 70% des évènements étudiées par la suite. Enfin, nous avons examiné l'influence de l'altitude du nuage en considérant des sommets à 2 et 4 km. Les propriétés des nuages et des aérosols ont été correctement restituées dans chacun des cas.

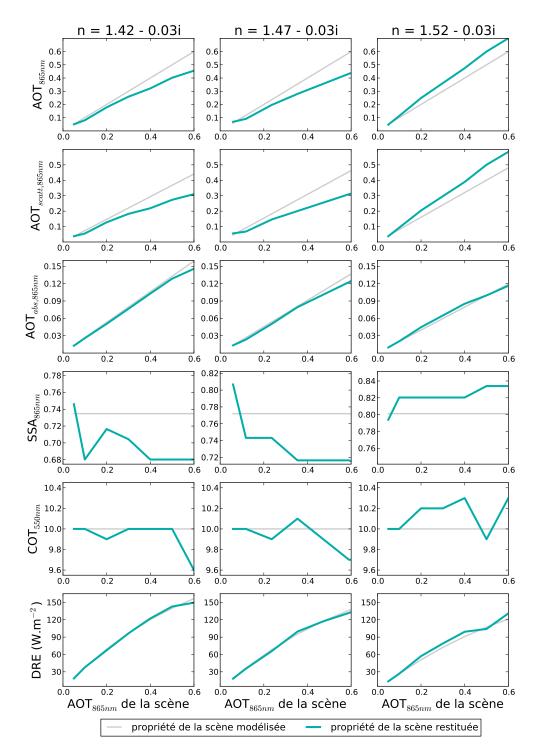


FIGURE 3.9 – Sensibilité de la restitution des propriétés des aérosols au-dessus des nuages à différents modèles d'aérosols absorbants (k=0.03). De haut en bas : épaisseur optique d'extinction, de diffusion et d'absorption des aérosols, albédo de diffusion, épaisseur optique du nuage et effet radiatif direct. Les propriétés des aérosols et des nuages utilisées pour modéliser le signal sont représentées en gris et les propriétés restituées par la méthode en vert. Les colonnes correspondent à différentes parties réelles de l'indice de réfraction des aérosols (de gauche à droite : 1.42, 1.47 et 1.52). Les aérosols ont un rayon granulométrique de $0.10\,\mu\mathrm{m}$ et le rayon effectif des gouttelettes des nuages et de $10\,\mu\mathrm{m}$.

3.4.2 Les effets 3D

Les codes de transfert radiatif plan-parallèle (codes 1D) utilisés pour la construction des LUT supposent les nuages homogènes verticalement et horizontalement. Plusieurs études ont démontré que l'hétérogénéité horizontale des nuages affectait la diffusion du rayonnement (Marshak et Davis, 2005; Cornet et al., 2013; Z. Zhang et al., 2012). Ces effets dits « 3D » peuvent entraîner des erreurs sur les propriétés des aérosols et des nuages restituées et, par conséquent, sur la valeur du forçage des aérosols.

3.4.2.1 Simulation 3D des luminances

Pour évaluer les impacts des effets 3D, un évènement plus réaliste a été simulé à partir de codes 3D. Le champs nuageux a été généré avec 3DCLOUD. L'hétérogénéité du nuage est contrôlée par le paramètre « d'inhomogénéité » $p = \sigma(\text{COT})/\text{COT}$ où $\sigma(\text{COT})$ est la déviation standard sous-pixel de l'épaisseur optique du nuage. Notons que la première étape de l'inversion inclut un filtre sur l'hétérogénéité du nuage : les évènements pour lesquels $\sigma(\text{COT}_{MODIS})$ est supérieur à 7.0 sont rejetés. La figure 3.10 présente la distribution de p pour les évènements passant les filtres de l'inversion entre juin et août 2008 dans la région du sud-est de l'Océan Atlantique. Seulement 5% des cas ont un paramètre d'inhomogénéité supérieur à 0.45.

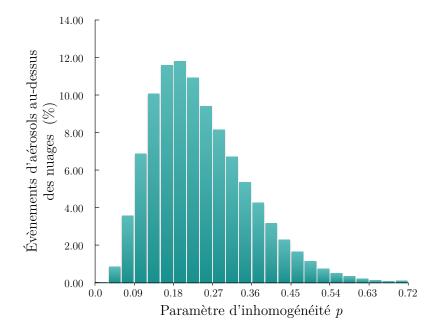


FIGURE 3.10 – Histogramme du paramètre d'inhomogénéité p pour les évènements d'aérosols au-dessus des nuages échantillonés par notre méthode au sud-est de l'Océan Atlantique, de juin à août 2008.

Les simulations ont été réalisées pour p = 0.6, ce qui représente une valeur haute parmi les évènements échantillonnés. L'épaisseur optique moyenne du nuage est fixée à

10.0 et la distribution en taille des gouttelettes suit une loi lognormale avec $r_{eff}=11.0\mu\mathrm{m}$ et $v_{eff}=0.02$. La couche d'aérosols surplombant le nuage est composée de particules fines $(r_g=0.12\mu\mathrm{m})$, d'AOT $_{865nm}=0.142$ et de $\mathrm{SSA}_{865nm}=0.781$ (k=0.035). Le code 3DMCPOL a permis de simuler le rayonnement aux trois longueurs d'onde utilisées pour l'inversion et pour un angle solaire de 40° . La figure 3.11 montre les luminances totale et polarisée obtenues avec le nuage hétérogène ainsi que celles obtenues en configuration « 1D » (à partir des propriétés moyennes du champ nuageux).

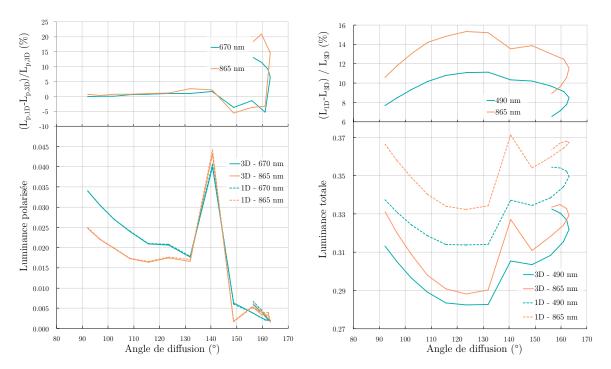


FIGURE 3.11 – Luminances totales (à gauche) et polarisées (à droite) simulées à partir du code 3DMCPOL pour des aérosols au-dessus des nuages. Les lignes continues correspondent au cas d'un nuage hétérogène (p = 0.6 - 3D) et les calculs faits à partir d'un nuage homogène (1D) sont en lignes pointillées.

3.4.2.2 Impact sur les propriétés des aérosols et des nuages restituées

Les propriétés des aérosols et des nuages ont été restituées à partir des simulations 3D présentées précédemment. Comme le montre la figure 3.11, l'hétérogénéité horizontale du champ nuageux influence peu le signal polarisé, surtout sensible aux premiers ordres de diffusion. Ainsi, la restitution du modèle d'aérosols et de l'épaisseur optique de diffusion ne semble pas affectée par l'hypothèse sur l'homogènéité du nuages.

Au contraire, les luminances totales apparaissent sensibles à l'hétérogénéité nuageuse. En moyenne, le nuage plan-parallèle (1D) produit $\sim 9\%$ de signal en plus à 490 nm et $\sim 13\%$ à 865 nm que le champ de nuage hétérogène. Dans une moindre mesure, les effets 3D modifient également la variation angulaire des luminances, plus « incurvées » qu'avec le nuage homogène. Le rapport de luminances L_{490}/L_{865} est moins altéré que

les luminances elles mêmes : il est de $\sim 94\%$ dans le cas d'un nuage homogène et de 97% pour le nuage hétérogène. Ainsi, l'impact de l'approximation 1D sur la restitution de l'albédo de diffusion des aérosols est relativement faible. L'inversion sous-estime légèrement l'absorption aérosol, avec $SSA_{865nm}=0.794$ (k=0.0325) au lieu de 0.781. L'épaisseur optique aérosol est alors très légèrement sous-estimée (0.140 au lieu de 0.142). La restitution de l'épaisseur optique du nuage est, par contre, beaucoup plus sensible à l'hétérogénéité. L'algorithme fournit une épaisseur optique de 7.6, ce qui correspond à une sous-estimation de 24% par rapport à la valeur moyenne de 10.

3.4.2.3 Impact sur le forçage

De la même façon que les effets 3D modifient les luminances, les flux radiatifs dépendent de l'hétérogénéité nuageuse. Dans le cas de nuages hétérogène, la détermination du forçage direct des aérosols nécessite de calculer les flux à partir de code de transfert radiatif 3D, fort coûteux en temps de calcul. Pour évaluer les impacts de l'approximation 1D, notre analyse se concentre sur les flux radiatifs simulés à 490 nm et au sommet de l'atmosphère. Les flux 3D avec $(F_{nua+aer}^{\uparrow})$ et sans aérosol (F_{nua}^{\uparrow}) ont été simulés avec le code 3DMCPOL à partir de la scène de référence décrite précédemment. Les flux 1D ont été calculés à partir des propriétés équivalentes 1D, c'est-à-dire les propriétés restituées par notre méthode d'inversion (COT = 7.6, AOT_{865nm} = 0.140 et SSA_{865nm} = 0.794).

	simulation 3D $(W.m^{-2}.\mu m^{-1})$		$(F_{1D} - F_{3D})/F_{3D}$ (%)
$F_{nua+aer}^{\uparrow}$	569.01	564.48	-0.79
F_{nua}^{\uparrow}	661.07	646.40	-2.22
$DRE = F_{nua}^{\uparrow} - F_{nua+aer}^{\uparrow}$	92.06	81.92	-11.01

Table 3.3 – Flux calculés avec et sans aérosol et forçage radiatif direct (DRE) au sommet de l'amotpshère à 490 nm (en $W.m^{-2}.\mu m^{-1}$).

Le tableau 3.3 présente les valeurs de flux obtenues. Les écarts observés sont très faibles pour les flux calculés (inférieurs à 2.3%). L'écart est plus faible pour le système aérosols+nuages que pour le nuage seul. Cela signifie que les aérosols lissent l'effet de l'hétérogénéité du nuage sous-jacent. L'effet direct des aérosols (DRE) pour le nuage hétérogène est supérieur de l'ordre de $10\,\mathrm{W.m^{-2}}.\mu\mathrm{m^{-1}}$ au cas du nuage homogène de propriétés équivalentes. Par conséquent, le fait de considérer un nuage plan-parallèle pour l'inversion et pour le calcul des flux entraîne une sous-estimation de l'effet direct des aérosols dans le cas de nuage hétérogène. Néanmoins, puisque l'effet d'absorption des aérosols est plus fort dans l'UV, on peut s'attendre à des écarts sur le flux spectral plus faibles aux plus hautes longueurs d'onde. Rappelons également que les propriétés des aérosols et des nuages ne sont restituées que pour des nuages relativement homogènes

3.5. Cas d'étude

et qu'un tel niveau d'hétérogénéité (p = 0.6) peut être considéré comme un cas limite dans notre étude.

3.5 Cas d'étude

3.5.1 Aérosols de feux de biomasse africaine

De juin à octobre, des aérosols de feux de biomasse d'origine anthropique sont fréquemment observés au-dessus des nuages au large de la côte sud-ouest de l'Afrique. Un tel évènement a été détecté par POLDER le 4 août 2008 (Fig. 3.12a). Sous la trace du capteur CALIOP (Fig. 3.13), la couche d'aérosols est située entre 2 et 5 km d'altitude et le sommet du nuage est à 1 km. Les propriétés des aérosols et des nuages ont été déterminées au-dessus de l'océan et les résultats sont présentés sur la figure 3.12.

L'épaisseur optique des aérosols (Fig. 3.12b) atteint des valeurs élevées de l'ordre de 0.7 à 865 nm. Comme prévu pour ce type de particules, les résultats de l'inversion indiquent qu'il s'agit d'aérosols fins (exposant d'Angström de 1.94 en moyenne -Fig. 3.12c). Le rayon granulométrique de ces fines particules, de $0.10 \,\mu m$ près de la côte, augmente jusque $0.16\,\mu\mathrm{m}$ à mesure que les aérosols s'éloignent. Les faibles albédos de diffusion reportés sur la carte 3.12d témoignent de la forte absorption de ces aérosols. C'est près de la côte que nous observons les valeurs les plus basses (~ 0.73 à 865 nm). Sur ce cas d'étude, la moyenne de l'albédo de simple diffusion est de 0.84 à 865 nm, ce qui est en accord avec les valeurs typiques fournies par AERONET pour les biomasses africaines (Dubovik et al., 2002; Sayer et al., 2014) et les mesures de la campagne SAFARI-2000 (Leahy et al., 2007; Johnson et al., 2008). De plus, la cohérence entre les propriétés des aérosols restituées au-dessus des nuages et celles restituées en ciel clair a été examinée. En ciel clair, la méthode développée par Waquet et al. (en préparation) utilise également les luminances totales et polarisées de POLDER pour déterminer l'épaisseur optique totale, l'épaisseur optique du mode fin ainsi que l'albédo de diffusion des aérosols. Les cartes combinées des deux produits sont présentées sur la figure 3.14. Comme la majorité des aérosols du mode fin devrait correspondre à la couche élevée d'aérosols de feux de biomasse, l'épaisseur optique au-dessus des nuages est comparée à l'épaisseur optique du mode fin en ciel clair. On observe une excellente continuité entre les deux méthodes, tant pour les épaisseurs optiques que pour les albédos de simple diffusion. Pour des latitudes inférieures à 20°S, l'albédo de simple diffusion déterminées au-dessus des nuages est plus faible. Cela pourrait être dû à la contribution relativement plus importante, en ciel clair, des aérosols du mode grossier, se situant dans la couche limite marine (par exemple, les embruns marins).

L'épaisseur optique du nuage restituée par la méthode et la différence avec les observations MODIS sont représentées sur les figures 3.12e et 3.12f. L'épaisseur optique

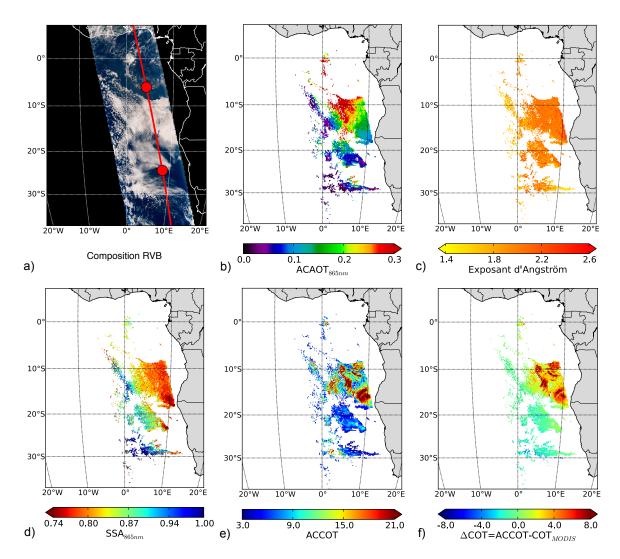


FIGURE 3.12 – Évènement d'aérosols de feux de biomasse au-dessus des nuages détecté au large de la côte sud-ouest de l'Afrique le 4 août 2008. (a) Composition colorée. Le ligne rouge correspond à la trace CALIOP et les deux points délimitent la partie du profil représenté sur la figure 3.13. (b) Épaisseur optique des aérosols au-dessus des nuages (ACAOT) à 865 nm. (c) Exposant d'Angström. (d) Albédo de simple diffusion (SSA) à 865 nm. (e) Épaisseur optique des nuages corrigée de l'absorption des aérosols (ACCOT). (f) Différence Δ COT entre l'ACCOT et l'épaisseur optique du nuage restituée par MODIS (COT_{MODIS}).

3.5. Cas d'étude

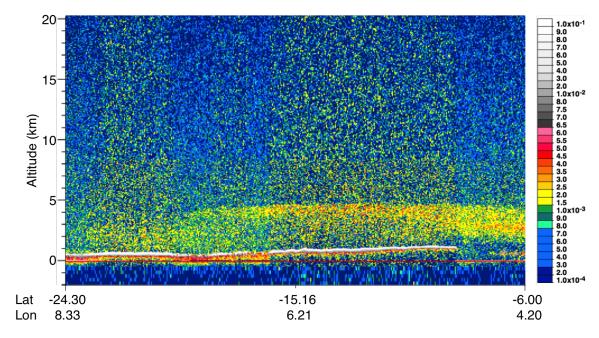


FIGURE 3.13 – Profil du signal du lidar CALIOP retrodiffusé (km $^{-1}$.sr $^{-1}$) à 532 nm pour le cas d'aérosols de feux de biomasse africaine observées le 4 août 2008 (cf. Fig. 3.12a).

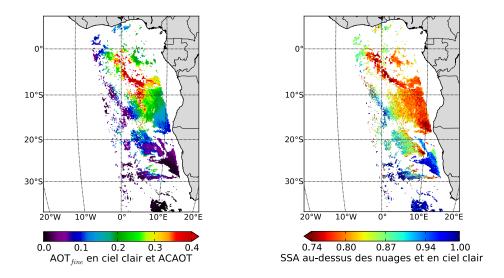


FIGURE 3.14 – Propriétés des aérosols en ciel clair et au-dessus des nuages à $865 \,\mathrm{nm}$ pour le cas d'aérosols de feux de biomasse du 4 août 2008. La figure de gauche représente l'épaisseur optique des aérosols au-dessus des nuages (ACAOT) et l'épaisseur optique des aérosols du mode fin en ciel clair (AOT_{fine}). La figure de droite correspond à l'albédo de simple diffusion.

POLDER suit les mêmes motifs que celle déduite de MODIS. Cependant, la comparaison révèle des biais systématiques lorsque des aérosols absorbants sont au-dessus des nuages. L'inversion, qui prend en compte l'absorption des aérosols, donne des valeurs plus élevées de l'épaisseur optique du nuage que le produit opérationnel MODIS, conformément à de nombreuses études (Haywood et al., 2004; Wilcox et al., 2009; Coddington et al., 2010; Meyer et al., 2013; Jethva et al., 2013). Comme expliqué dans la section 1.4.3, les aérosols absorbent aux longueurs d'onde traditionnellement utilisées pour déterminer l'épaisseur optique des nuages. Ne pas prendre en compte cette absorption dans le processus d'inversion entraîne une sous-estimation de l'épaisseur optique du nuage. L'impact des aérosols sur la luminance mesurée est d'autant plus important que le nuage est optiquement épais. Une différence de l'épaisseur optique de l'ordre de 15 est observée autour de 10°S et 8°E, zone pour laquelle le nuage est le plus épais et l'épaisseur optique d'absorption des aérosols la plus forte. En moyenne, l'épaisseur optique du nuage, corrigée de l'absorption des aérosols, est supérieure de 1.2 à la valeur donnée par MODIS.

3.5.2 Aérosols de feux de biomasse sibérienne

Dans l'hémisphère nord, les hautes latitudes sont également sujettes aux feux de forêt de juin à octobre. Les conditions climatiques particulières (Stocks et al., 2001) favorisent les feux d'origine naturelle. La Sibérie est l'une des régions les plus affectées par les feux de végétations boréales (Y.-H. Zhang et al., 2003) qui conduisent à la production d'importantes quantités de fumée. Ces aérosols sont transportés sur de longues distances (Jaffe et al., 2004) et peuvent être à l'origine d'impacts radiatifs significatifs (Lee et al., 2005; Péré et al., 2014). En juillet 2008, des feux sauvages se sont produits dans l'est de la Sibérie Paris et al. (2009). Des aérosols ont été détéctés par POLDER au-dessus des nuages le 3 juillet au niveau de la mer d'Okhotsk (Fig 3.15a). D'après les profils CALIOP (Fig. 3.16), le sommet des nuages est à environ 1 km d'altitude et l'altitude de la couche d'aérosols varie entre 10 et 2 km du sud vers le nord. On observe également des nuages à hautes altitudes autour de 37°N et 50°N. Sur les cartes de la figure 3.15, on constate que ces pixels ont été efficacement rejetés par les filtres cirrus de la méthode. Les rétrotrajectoires des masses d'air (Fig. 3.17) et le produit de détection des feux MODIS (Giglio et al., 2003) suggèrent qu'il s'agit d'aérosols de feux de biomasse provenant de l'intérieur de la Russie.

Comme pour le cas précédent, la méthode d'inversion a mis en évidence une grande quantité d'aérosols transportés au-dessus des nuages (Fig. 3.15b) avec une épaisseur optique moyenne de 0.31 à 865 nm et un pic à 3.0 au sud de la péninsule du Kamchatka (50°N). Dans le nord-ouest du cas d'étude, les aérosols sont associés à un rayon granulo-métrique compris entre 0.10 et 0.12 μ m. Dans le sud, leur rayon est un peu plus large (compris entre 0.12 et 0.16 μ m). L'exposant d'Angström (Fig. 3.15c) est légèrement plus élevé dans le nord (moyenne de 2.19) que dans le sud (moyenne de 2.02). Si ces

3.5. Cas d'étude

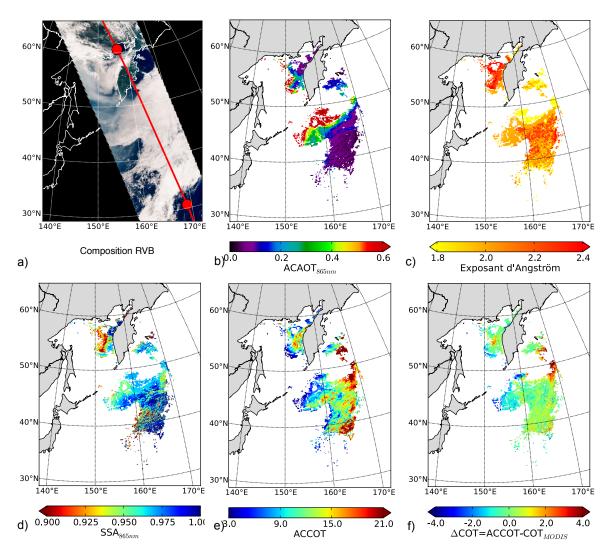


FIGURE 3.15 – Évènement d'aérosols de feux de biomasse au-dessus des nuages détecté à l'est de la Russie le 3 juillet 2008. Description identique à la figure 3.12.

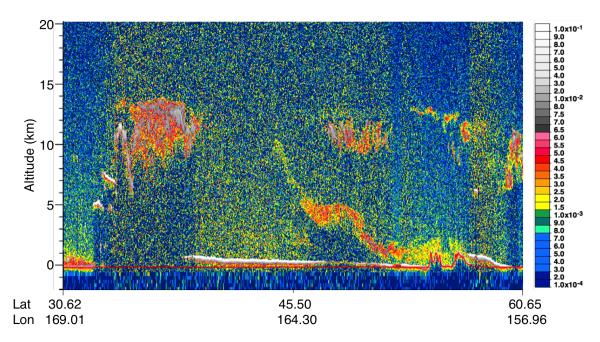


FIGURE 3.16 – Profil du signal du lidar CALIOP retrodiffusé (km⁻¹.sr⁻¹) à 532 nm pour le cas d'aérosols de feux de biomasse sibérienne observées le 3 juillet 2008 (cf. Fig. 3.15a).

aérosols ont la même taille que les aérosols de feux de biomasse africaine, leur exposant d'Angström diffère légèrement de part leur propriété d'absorption. En effet, leur albédo de diffusion (Fig. 3.15d) est bien plus élevé avec une moyenne de 0.959 contre 0.840 au large de la Namibie. Ces résultats mettent en évidence la nature diffusante des aérosols de feux de biomasse boréale comparativement aux aérosols des feux de savane africaine, conformément à l'analyse de Dubovik et al. (2002). On peut également noter la variabilité de l'absorption des aérosols au sein de cet évènement : la partie nord est associée à des particules plus absorbantes avec un albédo de simple diffusion de 0.943 contre 0.964 dans la partie sud. Cette différence pourrait provenir des processus de vieillissement des aérosols. En effet, les rétrotrajectoires des masses d'air (Fig. 3.17) suggèrent que les aérosols de la partie sud sont plus âgés (environ 3 jours) que des les aérosols plus au nord (environ 1 jour).

De la même manière que l'évènement au sud-est de l'Océan Atlantique, il y a une bonne cohérence spatiale entre l'épaisseur optique du nuage que nous restituons et celle de MODIS (Fig. 3.15e). Compte tenu du caractère faiblement absorbant des aérosols détectés ici, les écarts entre les deux méthodes sont faibles en général (Fig. 3.15f). Là où les nuages sont les plus épais optiquement, on note une forte sous-estimation de l'inversion MODIS par rapport à l'épaisseur optique restituée à partir de notre méthode, avec des biais allant jusque +12.0. En outre, MODIS surestime l'épaisseur optique du nuage lorsque celui-ci est optiquement fin ($\Delta(\text{COT})$ jusque -10.7).

3.5. Cas d'étude

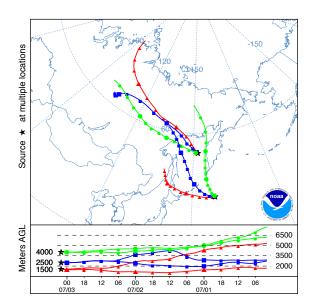


FIGURE 3.17 – Rétrotrajectoires des masses d'air obtenues avec le modèle HYSPLIT. Les masses d'air arrivent le 3 juillet 2008 à 1.5, 2.5 et 4 km d'altitude dans la zone où les aérosols ont été détectés au-dessus des nuages.

3.5.3 Poussières minérales sahariennes

Le dernier cas d'étude correspond à un soulèvement de poussières sahariennes transportées vers l'ouest au-dessus de l'Océan Atlantique. Ces aérosols ont été détectés au large des côtes marocaines et mauritaniennes le 4 août 2008. Sur la figure 3.18 sont reportés les résultats correspondants à deux orbites PARASOL. A l'ouest, on observe les poussières du cœur du panache associées à une épaisseur optique moyenne de 0.59 à 865 nm (Fig 3.18b). Les profils CALIOP indiquent que le sommet du nuage a une altitude de 1 km et que la couche d'aérosols est située environ entre 1.5 et 6 km (Fig. 3.19). L'évènement détecté sur la deuxième orbite est moins intense, avec une épaisseur optique moyenne de 0.27. Comme l'algorithme ne considère qu'un seul modèle de poussières (à 670 et 865 nm), l'exposant d'Angström restitué est constant pour ce cas d'étude et vaut 0.36 (Fig. 3.18c). De la même manière, l'albédo de diffusion à 865 nm est fixé par le modèle d'aérosols considéré pour l'inversion (0.984). A 490 nm, les aérosols observés sur les deux orbites ont des albédos de simple diffusion distincts. Les poussières à l'ouest sont légèrement plus absorbantes avec un albédo de diffusion de 0.947 en moyenne, contre, 0.965 pour les aérosols à l'est. Les valeurs obtenues sont cohérentes avec celles reportées par Dubovik et al. (2002).

Comme pour les cas précédents, on observe un bon accord entre notre valeur de l'épaisseur optique du nuage (Fig. 3.18e) et celle issue de l'algorithme opérationnel MODIS. Les poussières absorbent très peu le rayonnement à la longueur d'onde utilisée par MODIS (870 nm). Les différences entre les deux estimations sont donc faibles

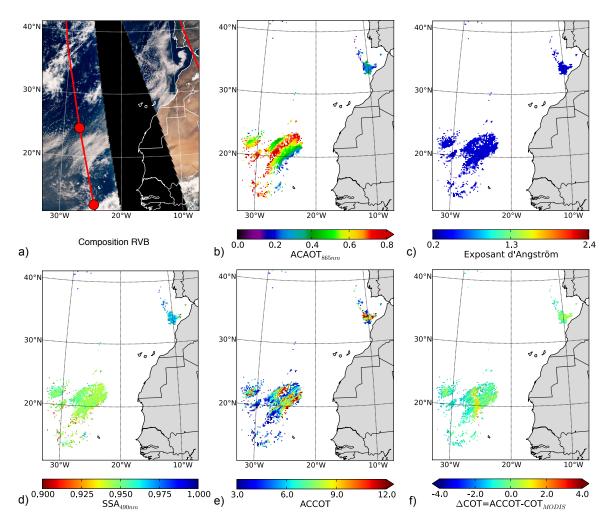


FIGURE 3.18 – Évènement de poussières minérales provenant du Sahara détecté audessus des nuages les 4 août 2008 . Description identique à la figure 3.12 sauf pour la carte (d) qui correspond à l'albédo de simple diffusion à 490 nm.

3.6. Conclusions

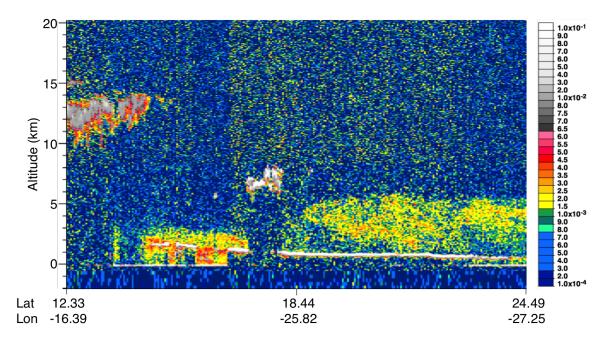


FIGURE 3.19 – Profil du signal du lidar CALIOP retrodiffusé (km⁻¹.sr⁻¹) à 532 nm pour le cas de poussières minérales sahariennes observées le 4 août 2008 (cf. Fig. 3.18a).

(Fig. 3.18f). On notera toutefois que MODIS restitue une épaisseur optique supérieure à notre estimation pour 60% des pixels observés, avec $\Delta(\text{COT})$ atteignant -5.3. De la même façon que pour les aérosols sibériens, ces biais négatifs sont obtenus lorsque que le nuage est optiquement fin et que l'épaisseur optique de diffusion des aérosols est forte. Pour l'ensemble de la scène, nous observons un biais moyen assez faible de -0.2. Notons que de faibles biais ont déjà été observés entre les produits opérationnels POLDER et MODIS (Zeng et al., 2012). Ils peuvent être expliqués par les caractéristiques différentes des mesures produites par les deux instruments et des méthodes d'inversion utilisées.

3.6 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons introduit une nouvelle méthode pour restituer les propriétés des aérosols et des nuages lorsqu'une couche d'aérosols est située au-dessus d'un nuage d'eau liquide. La resitution de l'épaisseur optique des aérosols, de leur albédo de simple diffusion et de l'épaisseur optique des nuages est permise au-dessus de l'océan pour des nuages homogènes suffisamment épais optiquement ($COT \ge 3$). Le point fort de cette méthode réside dans la complémentarité des mesures polarisées et des mesures de luminances totales fournies par l'instrument satellitaire passif POLDER. Dans un premier temps, les informations sur la diffusion des aérosols sont extraites des luminances polarisées. En effet, la diffusion par les aérosols au-dessus de nuages d'eau liquide entraîne une augmentation de la luminance polarisée pour des angles de

diffusion inférieurs à 130°. Cette création de polarisation permet de déterminer la taille et l'épaisseur optique de diffusion des aérosols. Ensuite, ces propriétés sont combinées aux mesures de luminances totales afin de déterminer simultanément l'épaisseur optique d'absorption des aérosols et l'épaisseur optique des nuages. De cette façon, il est possible de restituer les propriétés des aérosols avec un minimum d'hypothèses et de déterminer l'épaisseur optique des nuages corrigée de l'absorption des aérosols.

Par ailleurs, les impacts, sur les propriétés des aérosols et des nuages et sur le forçage radiatif, des différentes approximations et hypothèses de l'algorithme ont été évalués. L'approximation selon laquelle les luminances polarisées sont faiblement sensibles à l'absorption des aérosols est la plus grande incertitude sur l'inversion de l'albédo de diffusion. Lorsque la distribution en taille des aérosols est dominée par le mode fin, une sous-estimation maximale de -0.055 a été observée pour un évènement extrême d'aérosols absorbants au-dessus des nuages ($AOT_{865nm} = 0.6$ et $SSA_{865nm} = 0.77$). Toutefois, l'erreur sur l'albédo de diffusion est généralement inférieure à 0.03. Notons que la sous-estimation de l'albédo de simple diffusion est toujours liée à une sousestimation de l'épaisseur optique de diffusion des aérosols. De cette façon, la méthode produit une estimation fidèle de l'épaisseur optique d'absorption des aérosols, paramètre parmi les plus importants pour le calcul de l'effet direct des aérosols au-dessus des nuages. Ensuite, l'impact de l'approximation du nuage plan-parallèle a été examiné grâce à des modélisations obtenues avec des codes de transfert radiatif 3D. L'hétérogénéité des nuages modifie fortement les luminances totales mais peu le rapport des luminances et les luminances polarisées. Ainsi, la restitution des propriétés des aérosols n'est que faiblement affectée par les effets 3D. Enfin, l'approximation du nuage homogène conduit à une sous-estimation du forçage radiatif direct des aérosols. Néanmoins, les biais devraient rester faibles dans le reste de notre étude car l'algorithme dispose d'un filtre sur l'hétérogénéité des nuages.

La méthode d'inversion a été appliquée sur trois cas d'étude aux caractéristiques très contrastées. Le premier est un évènement d'aérosols provenant de feux de biomasse africaine détectés au-dessus des nuages du sud-est de l'Océan Atlantique. L'algorithme indique que les aérosols sont très absorbants (albédo de diffusion de 0.84 à 865 nm). De plus, les résultats ont mis en évidence une forte sous-estimation de l'épaisseur optique des nuages par le produit opérationnel MODIS. Les biais observés confirment la nécessité de prendre en compte l'absorption des aérosols pour la détermination de l'épaisseur optique des nuages. Le second cas d'étude correspond à des aérosols de feux de biomasse sibérienne. Cet évènement illustre la grande variabilité des propriétés des aérosols au-dessus des nuages. En effet, ces aérosols, plus diffusants que ceux du cas précédent, ont un albédo de simple diffusion de 0.96. D'autre part, l'augmentation de la diffusion causée par les aérosols faiblement absorbants peut être à l'origine d'une surestimation de l'épaisseur optique des nuages pas MODIS dans le cas de nuages fins. Enfin, un évènement d'aérosols provenant du Sahara a été étudié. Ce dernier cas d'étude a révélé la capacité de notre méthode à évaluer l'absorption différentielle des poussières minérales aux courtes longueurs d'onde pour une valeur donnée à 865 nm.

Chapitre 4

Effet direct des aérosols au-dessus des nuages

La méthode d'inversion décrite précédemment permet de mesurer les propriétés clés (l'épaisseur optique des aérosols, leur albédo de diffusion et l'épaisseur optique des nuages) permettant le calcul de l'effet direct des aérosols au-dessus des nuages. Dans ce chapitre, nous présenterons une méthode de calcul approchée du forçage et son domaine de validité. Nous détaillerons ensuite l'approche alternative qui a été mise en place au cours de notre travail. Enfin, les flux calculés à partir des propriétés aérosols et nuages mesurées par POLDER seront comparées aux flux radiatifs déterminés à partir des mesures CERES.

4.1 Les différentes approches

En diffusant et en absorbant le rayonnement solaire, les aérosols modifient directement le bilan énergétique de la Terre. En ciel clair, les observations passives ont apporté une contrainte forte sur le calcul du forçage direct des aérosols (Bellouin et al., 2005; Yu et al., 2006). En revanche, la détermination de l'effet direct des aérosols en ciel nuageux reste un défi lié à l'incertitude sur la connaissance des propriétés des aérosols et des nuages. Or, plusieurs études localisées sur la région de l'océan Indien (Podgorny et Ramanathan, 2001) et au sud-est de l'océan Atlantique (Keil et Haywood, 2003; Wilcox, 2012) ont révélé que les aérosols peuvent avoir un effet radiatif important au-dessus des nuages. Pour quantifier la perturbation radiative des aérosols en ciel clair et nuageux à l'échelle globale, Chung et al. (2005) et Su et al. (2013) ont utilisé une approche hybride qui consiste à combiner des paramètres issus de l'observation (pour les nuages et les aérosols en ciel clair) et de modélisations de chimie-transport (pour les aérosols en ciel nuageux). Notre travail montre que, grâce aux progrès des méthodologies d'inversion,

il est maintenant possible de calculer l'effet direct des aérosols à partir des mesures satellitaires.

La première approche consiste à utiliser les paramètres descriptifs des aérosols et des nuages déduits des mesures spatiales pour calculer les flux radiatifs en présence et en l'absence d'aérosols. À partir de l'épaisseur optique et de l'exposant d'Angström fournis par CALIOP et de l'albédo du nuage déterminé avec MODIS, Chand et al. (2009) ont calculé les flux à l'aide d'un code de transfert radiatif. S'appuyant sur les profils fournis par CALIOP, leur étude reporte, non seulement la perturbation radiative au sommet de l'atmosphère, mais aussi les taux d'échauffement dans l'atmosphère où la couche d'aérosols est localisée pour les cas d'aérosols de feux de biomasse au large de la côte sud-ouest africaine. En utilisant également une combinaison des propriétés fournies par CALIOP (pour les aérosols) et MODIS (pour les nuages), Oikawa et al. (2013) ont déterminé le forçage radiatif des aérosols à l'échelle globale, en ciel clair et en ciel nuageux (aérosols au-dessus des nuages et aérosols en-dessous des nuages hauts). Cependant, l'utilisation directe de code de transfert radiatif est couteuse en temps de calcul. Il est ainsi difficile d'étendre ce type d'approches à de grandes échelles spatiales et temporelles, en particulier à la résolution des instruments satellitaires passifs. Z. Zhang et al. (2014) ont développé une méthode statistique pour déterminer rapidement l'effet direct des aérosols à l'échelle d'une grille de plus basse résolution que les paramètres inversés. Celle-ci combine des LUT de forçages directs avec les histogrammes (au niveau de la grille) des épaisseurs optiques aérosols et nuages restituées. Cette méthode a notamment été appliquée aux paramètres des aérosols et des nuages déterminés à partir des mesures de MODIS (Meyer et al., 2015).

Une seconde stratégie consiste à calculer les flux, sans restitutions intermédiaires des propriétés des aérosols, mais directement à partir des mesures satellitaires et des paramètres des nuages. La méthode développée par De Graaf et al. (2012) utilise le spectre quasi continu de luminances mesurées par SCIAMACHY entre 240 et 1750 nm. La présence d'aérosols fins et absorbants au-dessus des nuages entraîne une diminution du rayonnement mesuré aux courtes longueurs d'onde. En revanche, comme leur épaisseur optique décroît lorsque la longueur d'onde augmente, l'impact de ces aérosols devient négligeable dans le proche infrarouge. L'épaisseur optique du nuage et le rayon effectif des gouttelettes sont alors déduits des luminances à 1246 et 1640 nm. Le spectre de luminances du nuage sans aérosols est ensuite modéliser à partir de ces paramètres. A partir d'un modèle de distribution angulaire, le flux du nuage seul et celui du nuage pollué sont déduits des spectres de luminances modélisés et mesurés, respectivement. Alternativement, Feng et Christopher (2015) ont développé une approche basée sur les flux mesurés par CERES. Le flux du nuage sans aérosol est, quant à lui, obtenu d'après une relation linéaire entre le flux du nuage pollué mesuré par CERES et l'« index aérosol » déterminé à partir d'OMI.

Les paramètres des aérosols et des nuages restitués par POLDER peuvent-être utilisés pour estimer l'effet direct des aérosols au-dessus des nuages. Dans l'optique de

réduire les temps de calculs, nous allons maintenant examiner la possibilité d'évaluer cette perturbation radiative à partir d'une expression analytique approchée. Nous analyserons, ensuite, les performances de cette approximation à l'aide d'une étude de sensibilité et plusieurs cas d'étude.

4.2 Calcul approché de la perturbation

4.2.1 La méthode approchée

Pour quantifier la perturbation radiative des aérosols stratosphériques, Lenoble et al. (1982) ont développé une méthode basée sur des simplifications de calcul de la méthode à deux flux (Irvine, 1968). Dans cette approche, l'albédo du système terre-troposphère est considéré comme lambertien. La réflectance bidirectionnelle est alors remplacée par l'albédo plan $\rho_{p,s}$ du système sous la couche d'aérosols. L'albédo plan au sommet de l'atmosphère ρ_p s'exprime alors en considérant les interactions successives entre l'atmosphère et la couche située en-dessous (Tanré et al., 1979) :

$$\rho_p(\mu_s) = S(\mu_s) + \frac{\rho_{p,s}(\mu_s)T(\mu_s)\bar{T}}{1 - \rho_{p,s}(\mu_s)\bar{S}}$$
(4.1)

où μ_s est le cosinus de l'angle solaire zénithal, $S(\mu_s)$, la contribution intrinsèque de l'atmosphère au flux, \bar{S} , l'albédo sphérique de l'atmosphère, $T(\mu) = e^{-\tau/\mu} + t(\mu)$ est la transmittance totale (directe et diffuse) de l'atmosphère, τ , l'épaisseur optique et \bar{T} est la moyenne de la transmittance sur μ . Lorsque l'albédo de diffusion ϖ_0 est proche de 1 ou lorsque l'épaisseur optique τ est faible, la fonction de diffusion $S(\mu_s)$ et la transmittance diffuse peuvent être exprimées de manière approchée par :

$$S(\mu_s) = \varpi_0 S_{\varpi_0 = 1}(\mu_s) t(\mu_s) = \varpi_0 t_{\varpi_0 = 1}(\mu_s)$$
(4.2)

Notons que les conditions d'application de cette approximation sont d'autant plus restrictives que l'angle solaire zénithal est grand.

Pour les petites épaisseurs optiques, les fonctions peuvent être développées au premier ordre en τ . La perturbation d'albédo plan $\Delta \rho_p = (\rho_p - \rho_{p,s})$ due à la présence d'aérosols s'exprime alors :

$$\frac{\Delta \rho_p(\mu_s)}{\tau} = \frac{\varpi_0(1-g)}{2} \left[1 - \rho_{p,s}(\mu_s) \right] \left[\frac{1}{\mu_s} - 2\rho_{p,s}(\mu_s) \right] - (1-\varpi_0) \left(\frac{1}{\mu_s} + 2 \right) \rho_{p,s}(\mu_s)$$
(4.3)

Le forçage radiatif instantané $\Delta F(\mu_s)$ des aérosols au sommet de l'atmosphère s'obtient en multipliant la perturbation d'albédo par l'éclairement incident $\mu_s E_0$:

$$\Delta F(\mu_s) = -\mu_s E_0 \Delta \rho_p(\mu_s) \tag{4.4}$$

Nous proposons d'évaluer l'effet direct des aérosols au-dessus des nuages à partir des expressions 4.3 et 4.4. L'albédo sous la couche d'aérosols $\rho_{p,s}$ est ici remplacé par l'albédo au sommet de l'atmosphère sans aérosol (nuage seul). Il est calculé avec le code de transfert radiatif GAME à partir de propriétés des nuages données (épaisseur optique, rayon effectif des gouttelettes, altitude du nuage). Pour plus de précision, l'albédo du nuage et la perturbation d'albédo sont déterminés sur 208 bandes spectrales comprises entre 0.2 et $4 \mu m$ et l'intégration spectrale est réalisée en fin de calcul.

4.2.2 Comparaison avec le calcul précis

Plusieurs simplifications ont été nécessaires pour aboutir à une expression simplifiée de la perturbation radiative causée par les aérosols au-dessus des nuages. Nous allons maintenant analyser dans quelles mesures ces approximations affectent notre calcul de l'effet direct des aérosols en comparant aux valeurs obtenues à partir du code de transfert radiatif GAME. Notons ici que les codes numériques nécessitent également de faire des approximations (comme la troncature de la fonction de la phase avec la méthode « $\delta-m$ », la résolution spectrale ...) pour résoudre l'équation de transfert radiatif. Ces approximations peuvent introduire de faibles biais sur les flux modélisés (Boucher et al., 1998). Pour cette raison, ces calculs seront qualifiés de « précis ».

L'effet direct des aérosols (DRE) a été calculé de manière approchée et précise pour plusieurs épaisseurs optiques en aérosols au-dessus des nuages (AOT) et pour différents albédos de simple diffusion (SSA). Le nuage en-dessous de la couche d'aérosols a une épaisseur optique de 10, les gouttelettes ont un rayon effectif de $10 \,\mu \mathrm{m}$ et le sommet du nuage est à 1 km. Le rayon granulométrique des aérosols est de $0.10 \,\mu\mathrm{m}$ et l'angle solaire est fixé à 40°. La figure 4.1 représente l'effet direct estimé par la méthode approchée (DRE_{app} - lignes continues) et calculé de manière précise (DRE_{pr} - lignes pointillées) en fonction de l'épaisseur optique en aérosols. La différence entre les deux est représentée en figure 4.2. Comme attendu, les aérosols purement diffusants sont associés à un effet de refroidissement et la perturbation radiative bascule du négatif au positif lorsque l'absorption des aérosols augmente. De manière générale, la méthode approchée a tendance à surestimer la valeur absolue du forçage. Pour les aérosols peu absorbants (SSA > 0.95), les écarts entre les deux méthodes de calcul sont faibles : une différence maximale de $-4.5\,\mathrm{W.m^{-2}}$ est observée pour $\mathrm{AOT_{SSA=1.0}}=0.6$, ce qui correspond à une erreur relative de 7.3%. Cette erreur est en grande partie causée par la surestimation de l'albédo dans les bandes d'absorption gazeuse. Sur la figure 4.3, le flux montant au sommet de l'atmosphère est représenté en fonction de la longueur d'onde

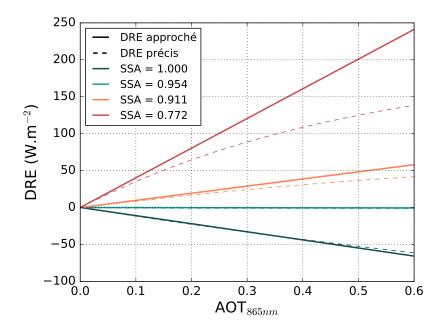


FIGURE 4.1 – Calcul précis (lignes pointillées) et approché (lignes continues) de l'effet direct des aérosols (DRE) en fonction de l'épaisseur optique aérosol (AOT) au-dessus des nuages pour plusieurs valeurs d'albédo de simple diffusion (SSA) à 865 nm.

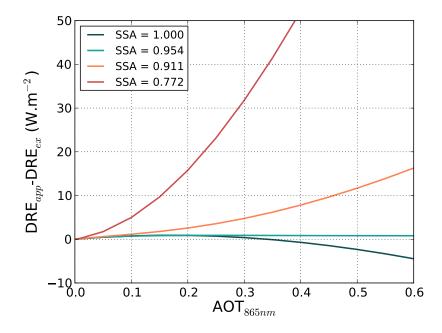


FIGURE 4.2 – Idem à la figure 4.1 pour la différence entre l'effet direct des aérosols calculé avec la méthode approchée (DRE_{app}) et calculé de manière précise (DRE_{pr}).

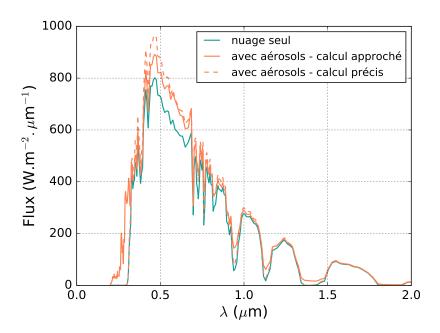


FIGURE 4.3 – Flux montant au sommet de l'atmosphère en fonction de la longueur d'onde λ . Le flux du nuage seul (ligne continue verte) a été modélisé avec le code de transfert radiatif GAME. Le flux avec la couche d'aérosols a été calculé avec la méthode approchée (ligne continue orange) et avec GAME (ligne pointillée orange). Le nuage a une épaisseur optique de 10 et les gouttelettes ont un rayon effectif des $10 \,\mu \text{m}$. La couche d'aérosols est composée de particules du mode fin (rayon granulométrique de $0.10 \,\mu \text{m}$) purement diffusantes et a une épaisseur optique de 0.6. L'angle solaire est de 40° .

pour le cas du nuage seul (ligne verte) et des aérosols au-dessus du nuage calculé avec GAME (ligne pointillée orange) et à partir de la méthode approchée (ligne continue orange). On constate que le calcul approché surestime le flux aux longueurs d'onde inférieures à $0.3\,\mu\mathrm{m}$ (absorption de l'ozone) et autour de 0.75 (absorption de l'oxygène) et $1.4\,\mu\mathrm{m}$ (absorption de l'ozone). Dans notre modèle simplifié, la couche d'aérosols est située au sommet de l'atmosphère. Le rayonnement qu'elle rétrodiffuse n'est donc pas absorbé par les gaz. Lorsque l'épaisseur optique d'absorption augmente, la précision du calcul du forçage direct avec la méthode approchée diminue. On observe un biais supérieur à $5\,\mathrm{W.m^{-2}}$ pour $\mathrm{AOT_{SSA=0.91}} > 0.3$ et $\mathrm{AOT_{SSA=0.77}} > 0.1$. Par conséquent, l'utilisation de cette méthode conduit à une surestimation de l'effet direct pour les évènements intenses d'aérosols absorbants au-dessus des nuages.

D'autre part, nous avons examiné l'hypothèse qui consiste à considérer le nuage comme un réflecteur lambertien. La figure 4.4 présente le calcul approché et précis de l'effet direct des aérosols en fonction de l'épaisseur optique du nuage (COT) pour plusieurs angles solaires θ_s . Les aérosols appartiennent au mode fin (rayon granulométrique de $0.1 \,\mu\text{m}$), ont une épaisseur optique de 0.2 et un albédo de diffusion de 0.91 à $865 \,\text{nm}$.

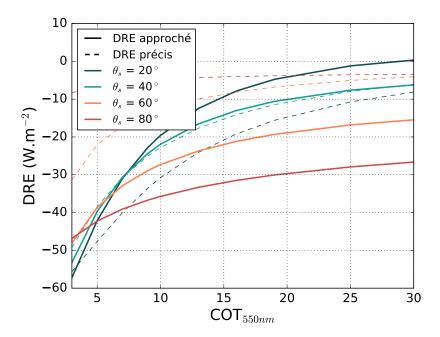


FIGURE 4.4 – Calcul précis (lignes pointillées) et approché (lignes continues) de l'effet direct des aérosols (DRE) en fonction de l'épaisseur optique nuage (COT) pour plusieurs valeurs d'angle solaire θ_s .

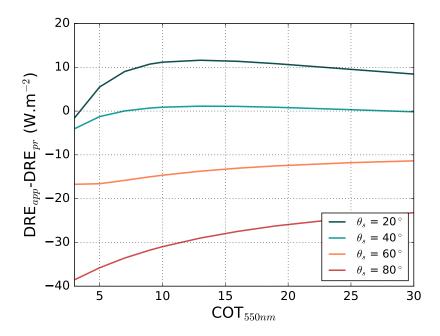


FIGURE 4.5 – Idem à la figure 4.4 pour la différence entre l'effet direct des aérosols calculé avec la méthode approchée (DRE_{app}) et calculé de manière précise (DRE_{pr}).

La différence entre les deux calculs de l'effet direct est représentée sur la figure 4.5. Les performances de la méthode approchée sont très inégales, les meilleurs résultats étant obtenus pour $\theta_s = 40^{\circ}$. Les écarts les plus importants ($-20.6 \, \mathrm{W.m^{-2}}$) apparaissent lorsque l'épaisseur optique du nuage est faible et pour les angles d'incidence solaire importants. Plus l'épaisseur optique du nuage est grande, meilleure est l'approximation sur la réflexion isotrope du rayonnement par le nuage. On constate ainsi une diminution de l'erreur sur le calcul du forçage lorsque l'épaisseur optique du nuage augmente.

En résumé, si la méthode approchée permet un calcul rapide de la perturbation radiative des aérosols, son utilisation ne convient pas à toutes les situations. Les erreurs augmentent avec l'épaisseur optique d'absorption, or, ce sont pour ces évènements que l'on attend les effets radiatifs les plus importants. Notons que la méthode à deux flux a également été envisagée pour déterminer le forçage direct des aérosols au-dessus des nuages (Tanré et al., 1979). Dans cette procédure alternative, l'albédo est déterminé au sommet du nuage avec GAME. Les flux avec et sans aérosols sont alors calculés en appliquant les fonctions de transmissions et de diffusions de l'atmosphère au-dessus du nuages (aérosols + gaz). Cette méthode permet d'améliorer la précision du calcul aux fortes épaisseurs optiques en aérosols.

Cependant, l'hypothèse du nuage lambertien reste une limitation forte. En effet, le nuage sous la couche d'aérosols ne réfléchit pas le rayonnement de façon isotrope lorsque son épaisseur optique est trop faible et pour des incidences solaires rasantes ou normales. Dans ces situations, ni le modèle approché présenté ici, ni le modèle à deux flux ne permettent d'estimer de façon satisfaisante l'effet direct des aérosols au-dessus des nuages.

4.3 Calcul précis

Pour garantir un calcul précis du forçage radiatif direct, une procédure s'appuyant sur les flux modélisés avec un code de transfert radiatif a été mise en place. Pour réduire les temps de calcul, des modélisations ont été réalisées avec GAME pour différentes combinaisons de paramètres aérosols, nuages, météorologiques et d'éclairement solaire et ont été stockées sous forme de LUT.

– Les modèles d'aérosols utilisés ont les mêmes distributions en taille que celles utilisées pour inverser les mesures de POLDER (Tab. 3.1). Les aérosols du mode fin sont « gris », c'est-à-dire que leur indice de réfraction est supposé constant entre 0.2 et $4\,\mu\mathrm{m}$ et vaut 1.47-k.i avec k compris entre 0 et 0.05. Pour les poussières minérales, la dépendance spectrale de l'absorption des aérosols est basée sur l'étude de Balkanski et al. (2007), en ajustant la partie imaginaire dans l'UV selon la valeur restituée par POLDER à 490 nm. La base et le sommet de la

couche d'aérosols sont situés respectivement à 1 et 2 km au-dessus du sommet du nuage.

- Les gouttelettes des nuages suivent également les mêmes distributions en taille que celles utilisées pour l'inversions des luminances polarisées (Tab. 3.1). La couche nuageuse a une épaisseur géométrique de 1 km et les LUT prennent en compte une altitude du sommet du nuage située entre 1 et 4 km.
- Enfin, les profils verticaux de pression, de température et de gaz ont été fixés d'après 4 modèles atmosphériques (« Mid-Latitude », « Sub-Arctic Summer », « Sub-Arctic Winter » et « Tropical » Cole et al., 1965). Différents contenus en ozone et en vapeur d'eau sont obtenus en ajustant les profils standards.

Les flux et le forçage sont déterminés par interpolation des LUT. L'épaisseur optique des aérosols, leur distribution en taille, leur indice de réfraction ainsi que l'épaisseur optique du nuage proviennent de l'inversion des luminances totales et polarisées POLDER (cf. paragraphe 3.3.2). Le rayon effectif des gouttelettes nuageuses correspond à celui restitué à partir des mesures MODIS (Nakajima et King, 1990). Trois méthodes de télédétection passive permettent de déterminer l'altitude du sommet du nuage : la méthode Rayleigh (Goloub et al., 1994) et la méthode de la pression oxygène (Vanbauce et al., 2003) à partir des mesures POLDER et la méthode dans l'infrarouge thermique (Menzel et al., 2010) à partir des observations MODIS. Ici, la méthode choisie est celle de la pression oxygène qui permet d'obtenir une estimation plus réaliste de l'altitude du sommet du nuage en présence d'aérosols (Waquet et al., 2009) et dans le cas de nuages bas (altitude inférieure à 1.5 km), situations majoritairement rencontrées dans nos observations. Les contenus en ozone et en vapeur d'eau sont obtenus à partir de réanalyses météorologiques. Enfin, le choix du modèle d'atmosphère est déterminé par la saison et la position géographique.

4.4 Analyse des résultats

La méthode de calcul approché ainsi que la procédure de calcul précis ont été appliquées aux cas d'étude présentés dans le paragraphe 3.5. Les deux calculs de la perturbation radiative vont, à présent, être comparés. Ensuite, les flux radiatifs modélisés à partir des propriétés des aérosols et des nuages restituées seront comparés aux flux fournis par CERES.

4.4.1 Aérosols de feux de biomasse africaine

La figure 4.6 présente la comparaison du forçage direct des aérosols de feux de biomasse observés au-dessus des nuages au large de la côte sud-ouest du continent africain le 4 août 2008. Comme ces aérosols sont très absorbants (albédo de diffusion de 0.84 en moyenne à 865 nm), on constate des perturbations radiatives instantanées importantes, atteignant un maximum de 195.0 W.m⁻² pour le calcul précis (Fig. 4.6a). Ces valeurs sont observées lorsque la couche d'aérosols absorbants et le nuage situé endessous sont optiquement épais. Notons néanmoins que 77% des pixels de cet évènement sont associés à un effet direct inférieur à 60 W.m⁻², d'après le calcul précis. Pour des latitudes inférieures à 18°S, où l'absorption des aérosols et leur épaisseur optique est plus faible et le nuage moins brillant, nous observons même des forçages faiblement négatifs. En moyenne, l'effet direct obtenu avec le calcul précis est de 36.5 W.m⁻².

La carte 4.6b correspond à l'effet direct des aérosols au-dessus des nuages calculé à partir de la méthode approchée. On constate que la perturbation radiative est bien plus forte que celle obtenue avec le calcul précis, avec une moyenne de $58.2\,\mathrm{W.m^{-2}}$ et une valeur maximale de $431.8\,\mathrm{W.m^{-2}}$. Le forçage calculé avec la méthode approchée est tracé en fonction de celui obtenu avec le calcul précis sur le graphique 4.6c. La couleur des points représente l'épaisseur optique d'absorption des aérosols à $865\,\mathrm{nm}$. Aux faibles épaisseurs optiques d'absorption (AOT $_{abs,865nm} < 0.03$), on observe une bonne cohérence entre les deux estimations. Puis, les écarts augmentent rapidement avec l'absorption des aérosols au-dessus des nuages, conformément à l'analyse présentée au paragraphe 4.2.2. Avec une surestimation de l'effet direct de $\sim 60\%$, on confirme que la méthode approchée ne permet pas une estimation satisfaisante du forçage direct des aérosols fortement absorbants au-dessus des nuages.

D'autre part, nous avons analysé la cohérence entre les flux radiatifs mesurés par CERES aux courtes longueurs d'ondes et les flux radiatifs modélisés avec le calcul précis à partir des propriétés des aérosols et des nuages restituées avec POLDER (Fig. 4.7). La comparaison a été effectuée à partir des données co-localisées à l'échelle 18x18 km². De plus, compte tenu de la résolution plus large des données CERES, le graphique 4.7c ne présente que les points associés à une fraction nuageuse CERES supérieure à 97%. On observe un bon accord entre les flux modélisés et mesurés : le flux mesuré par CERES est de 345.2 W.m² et celui modélisé est de 352.0 W.m² en moyenne. Les résultats de cette comparaison sont encourageants. Ils montrent que les paramètres des nuages et des aérosols restitués à l'aide de POLDER permettent de reproduire les flux estimés par CERES. Les forçages associés à partir des données POLDER devraient donc être réalistes.

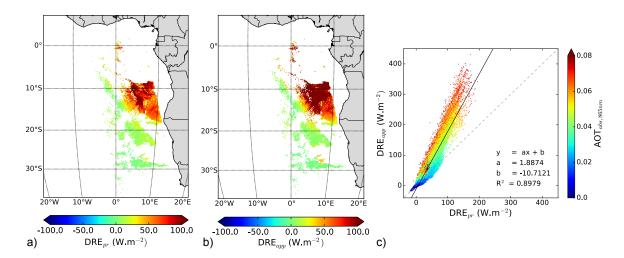


FIGURE 4.6 – Comparaison du calcul précis (DRE_{pr}) et approché (DRE_{app}) de l'effet radiatif direct des aérosols au-dessus des nuages pour l'évènement de feux de biomasse africaine du 4 août 2008.

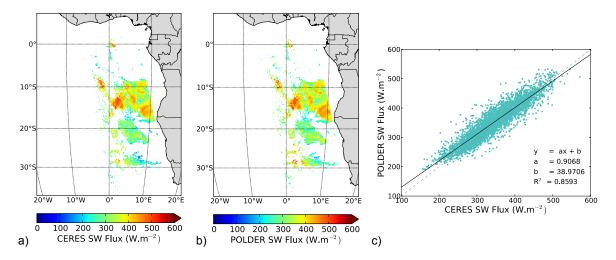


FIGURE 4.7 – Comparaison du flux mesuré par CERES aux courtes longueur d'onde avec celui modélisé à partir des propriétés des aérosols et des nuages mesurées avec POLDER pour l'évènement de feux de biomasse africaine du 4 août 2008.

4.4.2 Aérosols de feux de biomasse sibérienne

La comparaison entre le calcul précis et approché de l'effet direct des aérosols au-dessus des nuages détectés le 3 juillet 2008 est présenté sur la figure 4.8. Des forçages importants sont observés dans la partie nord (entre 54 et 57°N) avec des valeurs situées autour de 45 W.m⁻² pour le calcul précis (Fig. 4.8a). En revanche, les aérosols observés dans la partie sud-ouest (longitude inférieure à 160°E) sont associés à des effets directs fortement négatifs atour de -50 W.m⁻². En effet, le signe de la perturbation radiative dépend de l'équilibre entre la rétrodiffusion et l'absorption de la couche d'aérosols. Contrairement au cas précédent, les aérosols détectés ici sont beaucoup moins absorbants. Lorsque le nuage sous la couche d'aérosols n'est pas suffisamment épais optiquement, la rétrodiffusion du rayonnement par les aérosols l'emporte sur l'absorption et entraine une augmentation de l'albédo local au sommet de l'atmosphère. Cependant, on observe des valeurs de forçage aussi fortes de façons très localisées, l'effet direct des aérosols étant compris entre -30 et +30 W.m⁻² dans 88% des cas. En moyenne, le calcul précis donne un impact radiatif presque neutre avec un effet direct de -3.8 W.m⁻².

À l'inverse du cas précédent, on observe une bonne cohérence entre l'effet direct obtenu à partir du calcul approché (Fig. 4.8b) et celui déterminé avec la méthode précise. La valeur moyenne obtenue est ici de $-3.1\,\mathrm{W.m^{-2}}$. Avec un albédo de diffusion de 0.96 en moyenne à 865 nm, les aérosols de feux de biomasse sibérienne sont beaucoup moins absorbants que ceux provenant des feux africains. Ils constituent donc un cas plus favorable pour la méthode approchée. Sur le graphique 4.8c, on constate que l'épaisseur optique d'absorption est généralement inférieure à 0.03 à 865 nm et que les valeurs extrêmes d'épaisseur optique d'absorption des aérosols (AOT_{abs,865nm} > 0.07) sont associées aux écarts les plus importants. De plus, notons que l'incidence solaire ($\theta_s = 27.2^\circ$ en moyenne) et l'épaisseur optique du nuage de 12.2 en moyenne sont en faveur de l'hypothèse du nuage lambertien.

La comparaison entre les flux radiatifs modélisés à partir des paramètres aérosols et nuages mesurés avec POLDER et ceux mesurés par CERES est présentée sur la figure 4.9. Comme précédemment, une bonne cohérence est observée entre les deux estimations, avec un écart de $\sim 6\%$. Notons que, par compensation d'erreurs avec le flux modélisé pour le nuage seul, on peut s'attendre à un écart plus faible encore sur le forçage.

4.4.3 Poussières minérales sahariennes

Enfin, l'effet direct des aérosols au-dessus des nuages a été calculé pour les poussières sahariennes observées au-dessus de l'océan Atlantique, le 4 août 2008. La figure 4.10 présente les perturbations radiatives calculées (méthode précise). Contrairement aux

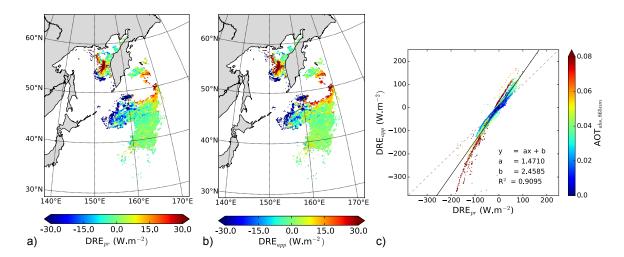


FIGURE 4.8 – Idem à la figure 4.6 pour l'évènement de feux de biomasse sibérienne du 3 juillet 2008.

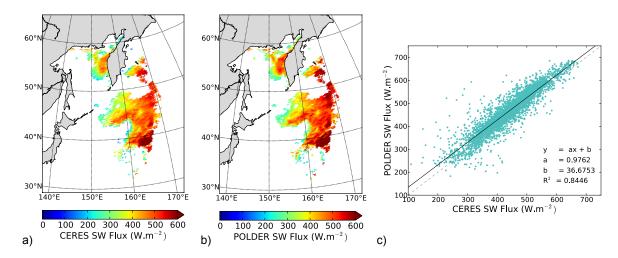


FIGURE 4.9 – Idem à la figure 4.7 pour l'évènement de feux de biomasse sibérienne du 3 juillet 2008.

deux cas précédents, la présence d'aérosols au-dessus des nuages est principalement associée à un effet de refroidissement, avec un effet direct négatif sur 92% de la zone étudiée et une moyenne de $-18.6\,\mathrm{W.m^{-2}}$. Les valeurs minimales et maximales sont respectivement de 41.3 et $-91.9\,\mathrm{W.m^{-2}}$ et sont atteintes au sud-ouest de la zone. On peut également constater la bonne corrélation entre l'épaisseur optique du nuage restituée avec POLDER (Fig. 3.18e) et l'impact radiatif estimé. Puisque les propriétés des aérosols observées ici varient peu, ceci illustre l'influence de l'albédo du nuage sur la valeur de l'effet direct.

L'effet direct calculé avec la méthode approchée est représentée sur la figure 4.10b et le graphique 4.10c montre sa comparaison avec le calcul précis. Les poussières minérales sont des aérosols qui absorbent peu le rayonnement. Cependant, les performances du calcul approché sont moins bonnes que pour le cas précédent. En moyenne, la méthode approchée surestime la perturbation radiative de $4.3\,\mathrm{W.m^{-2}}$, soit une erreur de $\sim 23\%$. Cet écart provient essentiellement de l'hypothèse sur la rétrodiffusion isotrope du rayonnement par le nuage, l'angle solaire étant relativement faible (22.3° en moyenne) et le nuage peu épais optiquement (6.6 en moyenne).

Les flux radiatifs mesurés par CERES et ceux modélisés à partir des paramètres POLDER sont représentés sur la figure 4.11. Sur les deux cartes, on constate que la valeur du flux calculée est généralement plus élevée que celle mesurée par satellite. Après avoir filtrer sur la fraction nuageuse (Fig. 4.11c), le flux moyen mesuré est de 339.1 W.m⁻² et celui modélisé est de 396.7 W.m⁻². Afin d'expliquer ces écarts, des calculs supplémentaires de flux radiatifs ont été réalisés en faisant varier les paramètres aérosols et nuages (épaisseur optique des aérosols, absorption dans l'ultraviolet, épaisseur optique des nuages, rayon effectif des gouttelettes). Une surestimation de l'épaisseur optique du nuage de l'ordre de 20% permettrait d'expliquer les écarts observés. Des erreurs de modélisation, comme le choix du modèle de profils atmosphériques, peuvent également introduire des biais sur le flux. Dans ce cas, notons que le biais sur le forçage sera plus faible. Les écarts pourraient aussi provenir du modèle angulaire appliqué pour convertir les réflectances CERES en flux. Notons que le nombre de points de comparaison pour ce cas d'étude est 4 fois plus petit que pour les deux cas d'étude précédents. Une analyse sur un plus grand jeu de données est nécessaire pour mieux expliquer ces écarts.

4.5 Conclusions

Les paramètres des aérosols et des nuages obtenus par inversion des mesures POLDER peuvent être utilisés pour calculer l'effet direct des aérosols au-dessus des nuages. Pour réduire les temps de calcul, nous avons testé les performances d'une méthode de calcul approchée de la perturbation radiative. L'expression analytique issue des travaux de Lenoble et al. (1982) repose notamment sur deux hypothèses. La première est que la

4.5. Conclusions

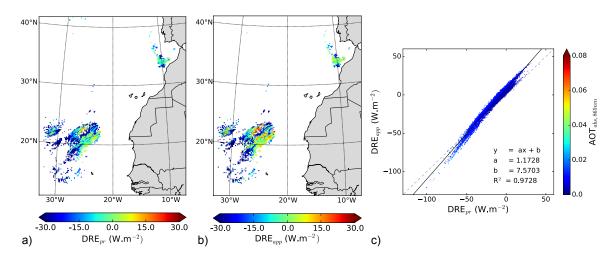


FIGURE 4.10 – Idem à la figure 4.6 pour l'évènement de poussières sahariennes du 4 août 2008.

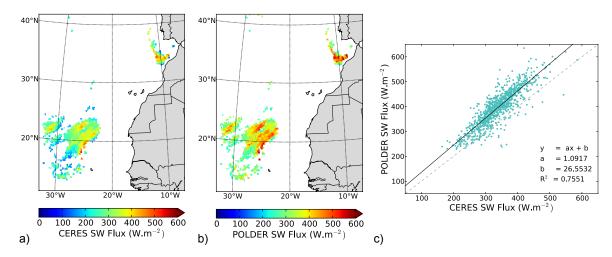


FIGURE 4.11 – Idem à la figure 4.7 pour l'évènement de poussières sahariennes du 4 août 2008.

réflexion du rayonnement par le nuage s'effectue de manière isotrope. En pratique, cette approximation permet de substituer la réflectance bidirectionnelle par l'albédo plan du nuage. Dans notre analyse, cet albédo est calculé avec le code de transfert radiatif GAME. Ensuite, les fonctions de diffusion et de transmittance diffuse sont simplifiées en considérant que l'épaisseur optique de la couche d'aérosols est suffisamment faible et que leur albédo de diffusion est suffisamment proche de 1. Ainsi, la méthode approchée ne permet pas d'estimer de façon satisfaisante le forçage en cas de contenu important en aérosols absorbants au-dessus des nuages. De plus, la comparaison avec le calcul précis a révélé que l'hypothèse sur le nuage lambertien peut entraîner des erreurs importantes sur le calcul de la perturbation radiative des aérosols, notamment lorsque l'épaisseur optique du nuage est faible.

Une procédure basée sur le calcul précis a été mise en place pour déterminer l'effet direct des aérosols au-dessus des nuages. Pour limiter les temps de calculs, les flux sont précalculés à l'aide d'un code de transfert radiatif et stockés sous forme de LUT. Pour les trois cas d'étude considérés, l'impact radiatif direct obtenu confirme la nécessité de quantifier précisément l'absorption des aérosols et l'albédo du nuage situé en-dessous. Comme on a pu le constater pour le cas des aérosols de feux de biomasse africaine, la présence d'aérosols très absorbants au-dessus d'un nuage épais entraîne une diminution importante de l'albédo locale se traduisant par des valeurs élevées de forçage direct. En revanche, des perturbations radiatives négatives associées à un effet de refroidissement sont observées lorsque les aérosols sont diffusants et que le nuage est optiquement fin, comme pour l'évènement de poussières sahariennes. L'effet direct obtenu pour les aérosols de feux de biomasse sibériennne est, quant à lui, très contrasté spatialement du fait de la variabilité des propriétés des aérosols et des nuages restituées.

L'effet direct modélisé avec le calcul précis a été comparé avec celui obtenu avec la méthode approchée pour les trois cas d'étude. Si la méthode approchée a permis de donner une bonne estimation de la perturbation radiative des aérosols de feux de biomasse sibérienne, il n'en est pas de même pour les aérosols détectés au large de la Namibie et pour les poussières sahariennes observées au-dessus des nuages. Cette comparaison nous confirme que cette méthode ne peut être appliquée aux cas d'aérosols absorbants et de nuages peu épais optiquement, ce qui restreint considérablement sont utilisation à grande échelle.

Enfin, nous avons comparé les flux radiatifs CERES avec ceux calculés à partir des propriétés des aérosols et des nuages restituées. Cette analyse constitue une validation indirecte des paramètres déterminés à partir des mesures POLDER. La corrélation observée entre les deux flux est très encourageante, en particulier pour les deux cas d'aérosols de feux de biomasse. Des écarts un peu plus importants ont été observés avec le cas de poussières minérales. Ils pourraient indiquer une surestimation de l'albédo du nuage par POLDER ou l'utilisation d'un modèle angulaire moins réaliste pour convertir les réflectances mesurées par CERES en flux. Une comparaison étendue à plusieurs mois

4.5. Conclusions

de données est nécessaire pour diagnostiquer les différences entre les deux estimations de flux.

Chapitre 5

Comparaison entre propriétés des aérosols mesurées avec POLDER et les modèles AeroCom

Les observations satellitaires sont aujourd'hui utilisées pour contraindre des aspects de plus en plus complexes des modèles globaux d'aérosols tels que, par exemple, le profil vertical. Dans les scènes nuageuses, les effets radiatifs des aérosols sont toujours associés à une grande variabilité parmi les modèles AeroCom. Celle-ci provient du manque d'information sur les propriétés des aérosols et des nuages pour ce type d'évènements. Dans ce chapitre, nous nous proposons de comparer certaines proriétés des aérosols restituées à partir de POLDER aux résultats des simulations réalisées à l'aide de modèles numériques. Dans un premier temps, nous établirons une procédure permettant de comparer de façon cohérente les sorties de modèles avec les observations fournies par l'instrument POLDER. Nous présenterons ensuite la comparaison à l'échelle globale de l'épaisseur optique des aérosols mesurée par POLDER avec les simulations. Enfin, nous concentrerons notre étude sur l'absorption des aérosols détectés au-dessus des nuages, dans le sud-est de l'océan Atlantique, pendant la saison des feux.

5.1 Le projet AeroCom

Les modèles globaux jouent un rôle clé dans l'évaluation de l'impact climatique des aérosols. Pour synthétiser les distributions spatio-temporelles des aérosols, ces systèmes numériques modélisent les processus d'émission et de dispersion des aérosols, ainsi que les transformations physico-chimiques et leur processus de déposition. L'intercomparaison réalisée dans le cadre du troisième rapport de l'IPCC a révélé une grande diversité parmi les modèles (Penner et al., 2001). En 2002, l'initiative internationale AeroCom (AEROsol

model interCOMparison) a été initiée pour comprendre la nature de cette diversité et réduire l'incertitude sur l'amplitude de l'effet radiatif des aérosols. Le projet s'articule autour de deux axes. Le premier vise à intercomparer les modèles via des exercices de modélisation. Le deuxième aspect du projet consiste à comparer les propriétés des aérosols simulées avec celles provenant des observations au sol (AERONET, EARLINET ...) et satellitaires (POLDER, MODIS, CALIOP, MISR ...) afin d'évaluer la capacité des modèles à reproduire leur distribution.

Une quinzaine de modèles ont participé à la phase I du projet, dont l'objectif principal était d'évaluer l'incertitude sur les propriétés optiques des aérosols et sur le forçage radiatif. Pour cela, quatres exercices ont été proposés. Le premier, appelé « expérience A », consistait à utiliser les modèles dans leur configuration standard afin d'établir une base de données de référence. Dans le cadre du second exercice, appelé « expérience B », il était demandé aux modélisateurs d'utiliser des émissions prescrites par AeroCom pour l'année 2000 (Dentener et al., 2006), le but étant d'éliminer l'incertitude associée aux choix des conditions initiales. L'« expérience PRE » (pour PREindustriel) utilisait une prescription des émissions pour l'année 1750, afin d'évaluer, par comparaison avec l'expérience B, l'impact de l'émission des aérosols d'origine anthropique sur le climat. Enfin, l'« expérience INDI » (pour INDIrect) correspond à une étude de sensibilité visant à estimer l'impact des aérosols sur le cycle hydrologique. Cette première analyse a révélé une forte variabilité de la plupart des paramètres étudiés (propriétés optiques, forçage, distribution verticale, transport, dépôt ... - Kinne et al., 2006; Schulz et al.. 2006; Textor et al., 2006). De plus, Textor et al. (2007) ont montré que la différence entre les émissions des modèles ne constituait pas la principale cause de cette variabilité.

À la suite de cette première phase, il est apparu que les expériences et les paramètres demandés étaient insuffisants pour établir un véritable diagnostique de la variabilité observée. Ainsi, de nouveaux exercices de modélisation avec des diagnostiques adaptés ont été conçus et proposés en 2009 pour la phase II, et en 2015 pour la phase III du projet.

5.2 Comparaison à l'échelle globale

5.2.1 Données

5.2.1.1 POLDER

Pour ce premier exercice de comparaison des aérosols au-dessus des nuages, nous allons utiliser les épaisseurs optiques restituées à partir des luminances polarisées POLDER (résolution $18 \times 18 \, \mathrm{km^2}$ - cf. paragraphe 3.2.2). Les inversions ont été réalisées à partir des données de niveau 1 provenant de la collection 2 v03.02 (distribuée par le

CNES à la fin de l'année 2014). L'épaisseur optique à 550 nm est calculée à partir de l'épaisseur optique restituée à 865 m et de l'exposant d'Angström.

La période choisie pour la comparaison est l'année 2006, une année de référence pour les modèles en matière de données météorologiques. En plus de la distribution globale, nous examinerons plus en détails quatre régions marquées présentant de nombreux cas de transport d'aérosols au-dessus des nuages (Fig. 5.1) : le Sud-Est de l'Océan Atlantique (SEOA) entre juillet et septembre, la région au large des côtes sahariennes de juin à août, la Mer d'Okhotsk de mai à juillet et la région arctique de mai à juillet.

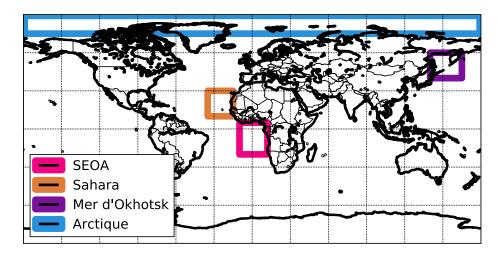


FIGURE 5.1 – Localisation des zones de comparaison étudiées. (SEOA : Sud-Est de l'océan Atlantique)

5.2.1.2 AeroCom

Les simulations utilisées ici correspondent à l'exercice de contrôle (avec des émissions de référence) de la phase II d'AeroCom réalisé pour l'année 2006. Pour notre analyse, nous disposions des distributions, journalières ou mensuelles, du profil vertical de la fraction nuageuse, de l'extinction et de l'absorption des aérosols à 550 nm pour douze modèles dont les principales caractéristiques sont résumées dans le tableau 5.1.

5.2.2 Mise en place du protocole

Les informations fournies par les modèles présentent des caractéristiques très différentes de celles issues des observations POLDER (résolution temporelle, spatiale, paramètres des nuages). Pour assurer une démarche la plus cohérente possible, il est nécessaire d'évaluer dans quelles mesures les paramètres aérosols et nuages mesurés peuvent être reliés aux propriétés simulées.

Modèle	Type	Résolution horizontale	Niveaux	Résolution temporelle	Responsables
CAM4-Oslo-Vcmip5	MCG	$2.5^{\circ} \times 1.8^{\circ}$	26	Mensuelle	A. Kirkevåg, T. Iversen, Ø. Seland
CAM5-MAM3-PNNL CAM5.1-MAM3-PNNL	MCG	$2.5^{\circ} \times 1.8^{\circ}$	30	Mensuelle	X. Liu, R. C. Easter, S. Ghan, P. J. Rasch, JH. Yoon
GMI-MERRA GMI-MERRA-v3	MCT	$2.5^{\circ} \times 2.0^{\circ}$	72	Mensuelle	H. Bian, H. Yu
				Journalière et	
GOCART-v4	MCT	$2.5^{\circ} \times 2.0^{\circ}$	30	mensuelle	T. Diehl, M. Chin
HadGEM2-ES	MCG	$1.8^{\circ} \times 1.2^{\circ}$	38	Mensuelle	N. Bellouin
HadGEM3-A(*)	MCG	$1.8^{\circ} \times 1.2^{\circ}$	85	Journalière	N. Bellouin, J. Mollard
IMPACT-Umich	MCT	$5.0^{\circ} \times 4.0^{\circ}$	46	Mensuelle	G. Lin, J. Penner, L. Xu, C. Zhou
ECHAM5-HAM2	MCG	$1.8^{\circ} \times 1.8^{\circ}$	31	Journalière	K. Zhang,P. Stier,J. Feitcher
OsloCTM2	MCT	$2.8^{\circ} \times 2.8^{\circ}$	60	Journalière	G. Myhre, R. G. Skeie, T. Berntsen
SPRINTARS-v384	MCG	$1.1^{\circ} \times 1.1^{\circ}$	56	Journalière et mensuelle	T. Takemura

Table 5.1 – Description générale des modèles. (MCT : Modèle de Chimie Transport, MCG : Modèle de Circulation Générale, (*) : les poussières minérales ne sont pas incluses dans le modèle HadGEM3-A)

5.2.2.1 Définition d'un nuage dans les modèles

La première étape consiste à définir la couche nuageuse dans les modèles conformément à la sensibilité des observations POLDER. En l'absence d'information plus détaillée sur la distribution verticale des nuages dans les modèles, nous allons utiliser les profils de fraction nuageuse en les traitant avec l'approximation dite du « maximum overlap », c'est-à-dire, en faisant l'hypothèse que les couches nuageuse de chaque niveau du modèle se superposent de façon à maximiser leur recouvrement. La figure 5.2 représente les profils de fraction nuageuse et de paramètres aérosols issus du modèle HadGEM2-ES dans la zone du SEOA en août. Nous distinguons clairement la couche d'aérosols absorbant située autour de 3 km et surplombant un nuage localisé à 1 km d'altitude. Dans le modèle, la détermination de l'altitude du sommet du nuage est

réalisée en balayant le profil nuageux du sommet de haut en bas et en s'arrêtant à une valeur seuil de la fraction nuageuse. Comme la mesure PARASOL et notre méthode d'inversion sont sensibles à la présence d'aérosols au-dessus de nuage d'eau liquide et que les cas de cirrus sont rejetés par nos filtres, nous commençons le balayage à une altitude de 6 km. L'épaisseur optique aérosols est alors obtenue en intégrant le coefficient d'extinction des aérosols au-dessus du nuage.

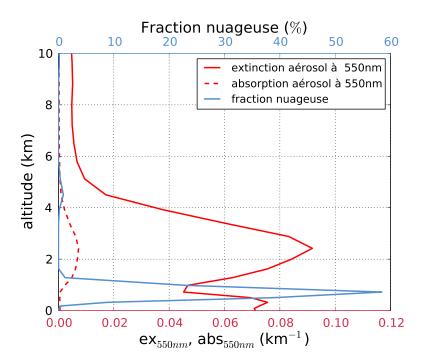


FIGURE 5.2 – Distribution verticale de fraction nuageuse, de l'extinction et de l'absorption des aérosols (à 550 nm) pour le modèle HadGEM2-ES dans la zone du SEOA en août.

5.2.2.2 Choix du seuil sur la fraction nuageuse

Nous cherchons à présent à déterminer la valeur du seuil sur la distribution verticale de la fraction nuageuse. Pour cela, nous avons calculé la moyenne globale annuelle de l'épaisseur optique aérosol au-dessus des nuages pour différentes valeurs de seuil. Sur la figure 5.3, on observe, en général, que l'épaisseur optique moyenne augmente puis décroît à partir d'un seuil de $\sim 15\%$. Dans un premier temps, l'augmentation du seuil sur la fraction nuageuse entraîne la diminution de l'altitude du sommet du nuage. L'intégration de l'extinction des aérosols est alors faite sur une couche plus épaisse. Ensuite, lorsque le seuil sur la fraction nuageuse est trop grand, le nuage n'est plus détecté et la quantité d'aérosols au-dessus des nuages diminue. Dans la suite, nous fixons le seuil à 15\%. L'évolution annuelle de l'épaisseur optique aérosol obtenue pour ce seuil est représentée sur la figure 5.4. En plus de la grande disparité entre les modèles, on constate qu'il existe des différences entre les épaisseurs optiques déterminées à partir des données mensuelles et journalières pour un même modèle (pour GOCART-v4 et

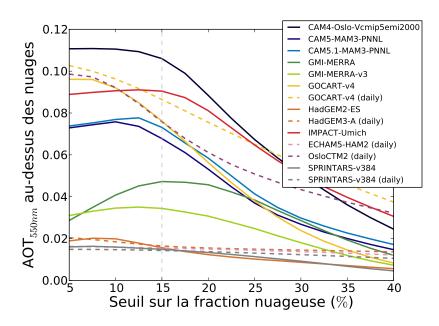


FIGURE 5.3 – Évolution de l'épaisseur optique globale des aérosols au-dessus des nuages (à 550 nm) en fonction du seuil sur la fraction nuageuse.

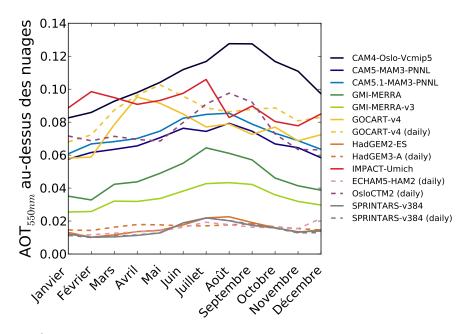


FIGURE 5.4 – Évolution temporelle de l'épaisseur optique globale des aérosols au-dessus des nuages obtenue pour un seuil sur la fraction nuageuse de 15%.

SPRINTARS-v384). Il apparait donc important d'analyser l'impact de la résolution temporelle sur la variabilité de l'épaisseur optique aérosol et de vérifier si le nuage peut être défini de façon cohérente avec les données mensuelles et les données journalières.

5.2.2.3 Impact de la résolution temporelle des sorties de modèles

Pour étudier l'impact de la résolution temporelle, nous analysons sur les deux modèles ayant fourni des informations journalières et mensuelles : GOCART-v4 et SPRINTARS-v384. La figure 5.5 représente les fonctions de densité de probabilité de l'altitude du nuage pour le SEOA (de juillet à septembre - a), la région à l'ouest du Sahara (de juin à août - b), la mer d'Okhotsk (de mai à juillet - c) et l'Arctique (de mai à juillet - d). De manière générale, les distributions obtenues à partir des données journalières (lignes en pointillées) sont plus larges que celles correspondants aux moyennes mensuelles (lignes continues). Nous observons également des différences au niveau de la valeur moyenne. Pour un même seuil de fraction nuageuse (15%), l'altitude du sommet du nuage est généralement plus élevée avec la résolution journalière. Dans ce

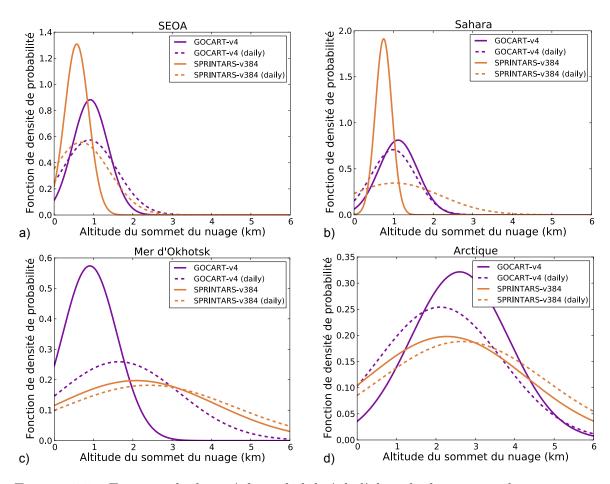


FIGURE 5.5 – Fonction de densité de probabilité de l'altitude du sommet du nuage pour les 4 régions définies sur la figure 5.1.

cas, il est nécessaire de baisser le seuil pour les données mensuelles afin d'être cohérent avec les données journalières. Cependant, nous constatons la tendance inverse pour le modèle GOCART-v4 au niveau du Sahara et de l'Arctique. Ceci nous montre qu'à l'échelle globale, il n'est pas possible de définir la couche nuageuse dans les modèles de façon simple et cohérente pour les deux résolutions temporelles.

En outre, Schutgens et al. (2015) ont montré que la différence de résolution temporelle entre les observations et les modèles impactait l'évaluation des modèles. Ainsi, les moyennes mensuelles ne permettraient pas de retranscrire la variabilité des propriétés des aérosols observées. Pour minimiser les problèmes d'échantillonnage, nous décidons de n'utiliser que les données journalières et d'y appliquer le masque de disponibilité des inversions POLDER.

5.2.2.4 Impact de la phase thermodynamique du nuage

Si les nuages simulés pour des altitudes supérieures à 6 km sont généralement en phase glace, il est possible qu'en-dessous, les nuages soient présents sous forme de mélange de phase de glace et liquide. Définir la couche nuageuse sans ternir compte de sa phase thermodynamique peut biaiser notre comparaison avec les observations qui ne sont réalisées qu'au-dessus des nuages d'eau liquide. Pour le modèle HadGEM3-A, nous disposons, en plus des profils de fraction nuageuse toutes phases confondues, des profils pour les nuages d'eau liquide uniquement. Les distributions d'épaisseur optique aérosol ont été déterminées en définissant le sommet du nuage sans tenir compte de sa phase thermodynamique d'une part et, d'autre part, en utilisant la fraction nuage d'eau liquide (Fig. 5.6). On constate que la prise en compte de la phase influence sensiblement l'estimation de l'épaisseur optique aérosol simulée au-dessus des nuages. En appliquant

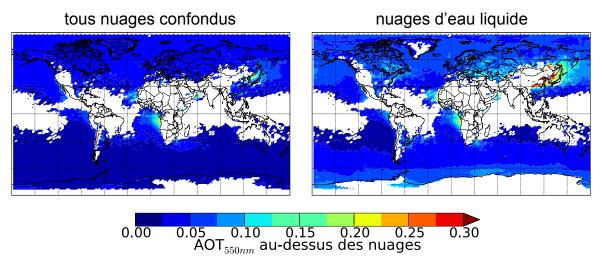


FIGURE 5.6 – Épaisseur optique aérosol au-dessus des nuages dans le modèles HadGEM3-A en considérant toutes les phases thermodynamiques de nuages (à gauche) et les nuages d'eau liquide seulement (à droite).

le seuil de 15% sur la fraction de nuage d'eau liquide, nous détectons une altitude du nuage plus basse dans le modèle. Nous observons alors une épaisseur optique aérosol plus élevée, notamment pour des latitudes inférieures à 30°S et dans le nord de l'océan Pacifique.

En l'absence de profil sur la fraction nuageuse en phase liquide pour les autres modèles, nous décidons de transposer l'information sur la phase des nuages du modèle HadGEM3-A. La fraction nuageuse en phase liquide $F_{liquide}$ des modèles est calculée à partir du rapport des fractions nuageuses HadGEM3-A:

$$F_{liquide}(z, lat, lon, t) = F_{totale}(z, lat, lon, t) \left(\frac{F_{liquide}(z, lat, lon, t)}{F_{totale}(z, lat, lon, t)}\right)_{\text{HadGEM3-A}}$$
(5.1)

où F_{totale} est la fraction nuageuse toutes phases confondues, et z, lat, lon et t sont respectivement l'altitude, la latitude, la longitude et la date. La figure 5.7 représente le profil du rapport $F_{liquide}/F_{totale}$ du modèle HadGEM3-A pour les 4 régions définies précédemment. Dans ce modèle, les nuages du SEOA et au large du Sahara sont totalement liquides en-dessous de 4 km. La prise en compte de la phase du nuage influencera faiblement notre estimation de l'épaisseur optique aérosols dans ces deux régions. En revanche, comme attendu pour ces latitudes élevées, le rapport de phase confirme l'importance des nuages de glaces au-dessus de la Mer d'Okhotsk et en Arctique.

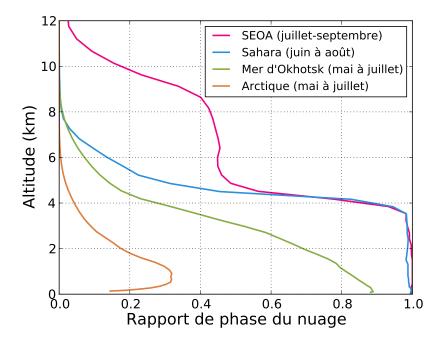


FIGURE 5.7 – Profil du rapport de la phase thermodynamique du nuage dans le modèle HadGEM3-A sur les 4 régions définies sur la figure 5.1.

5.2.3 Résultats

L'épaisseur optique des aérosols au-dessus des nuages a été calculée pour les 5 modèles ayant fournies des paramètres journaliers : GOCART-v4, HadGEM3-A, ECHAM5-HAM2, OsloCTM2 et SPRINTARS-v384. Rappelons que les simulations du modèle HadGEM3-A utilisées ici n'incluent pas les poussières minérales. La figure 5.8 présente les cartes de moyenne annuelle provenant de POLDER et des simulations. Tout d'abord, nous constatons qu'il existe une bonne cohérence spatiale entre les modèles et les observations. Les modèles prévoient la présence d'aérosols au-dessus des nuages dans la région du SEOA, au nord-est de l'océan Pacifique, au large des côtes californiennes et aussi dans les régions sous l'influence des poussières désertiques (au niveau des côtes nord-ouest africaine, de la péninsule arabique et à proximité des déserts asiatiques). Par ailleurs, on observe une grande variabilité sur l'estimation de l'épaisseur optique des aérosols au-dessus des nuages. GOCART-v4 est le modèle prédisant les plus fortes épaisseurs optiques aérosols au-dessus des nuages, notamment dans l'Hémisphère Nord. Le modèle SPRINTARS est celui qui prédit le moins d'aérosols au-dessus des nuages. Cette première analyse nous montre qu'il existe une grande disparité de la distribution verticale des aérosols prédite par les modèles.

Nous étudions à présent la variabilité de l'épaisseur optique simulée et observée sur les 4 régions définies précédemment. Comme l'a montrée la figure 5.7, la correction sur la phase thermodynamique du nuage a peu d'influence dans le SEOA et au large du Sahara mais a un impact au-dessus de la Mer d'Okhotsk et de l'Arctique. Les distributions d'épaisseurs optiques de GOCART-v4 sont faiblement influencées par la prise en compte de la phase du nuage. Ceci suggère que le modèle a tendance à générer des aérosols à des altitudes plus hautes. Les modèles HadGEM3-A, ECHAM5-HAM2 et SPRINTARS sous-estiment la valeur moyenne et la variabilité de l'épaisseur optique aérosols. Enfin, OsloCTM2 est le modèle qui reproduit le mieux les observations POLDER, à l'exception de l'Arctique où GOCART-v4 est le plus proche des valeurs restituées.

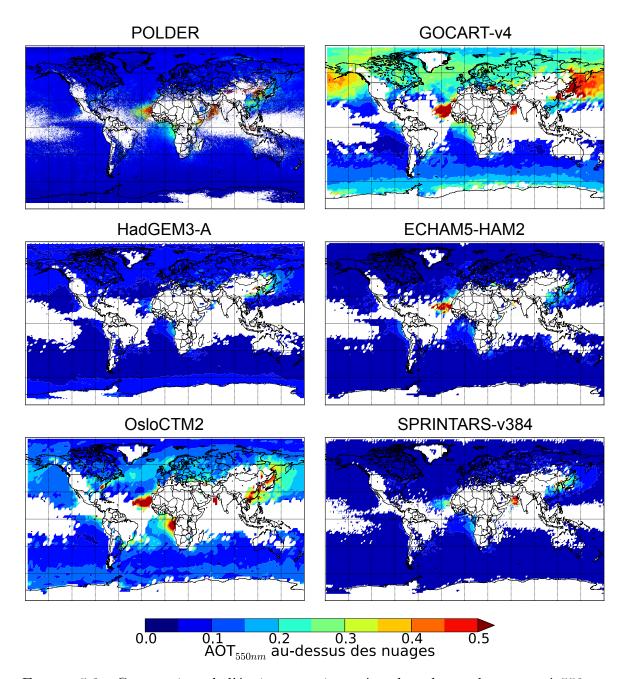


FIGURE 5.8 – Comparaison de l'épaisseur optique aérosol au-dessus des nuages à $550\,\mathrm{nm}$ pour l'année 2006.

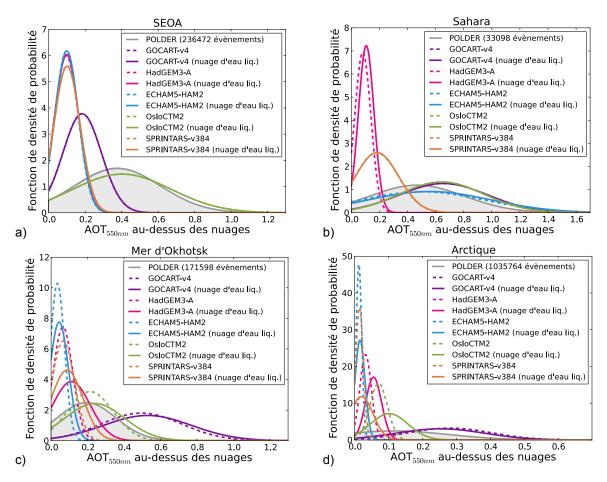


FIGURE 5.9 – Comparaison de la distribution de l'épaisseur optique aérosol au-dessus des nuages mesurée par POLDER avec celle des modèles pour les 4 régions définies sur la figure 5.1.

5.3 Comparaison des propriétés des aérosols au dessus des nuages au sud-est de l'océan Atlantique

La suite de ce chapitre est consacrée aux aérosols de feux de biomasse fréquemment présents au-dessus des nuages au large de la Namibie et de l'Angola, pendant la saison des feux. Comme nous avons pu le constater lors de notre première analyse, la couche de stratocumulus au sud-est de l'océan Altantique est bien définie dans les modèles, ce qui facilite la comparaison avec les observations POLDER. En plus de l'épaisseur optique aérosol, notre étude portera sur l'albédo de diffusion restitué à partir de l'inversion des luminances totales et polarisées (cf. paragraphe 3.3.2). Les résultats que nous présentons ici ont été soumis au journal Geophysical Research Letters le 9 septembre 2015.

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

- F. Peers¹, N. Bellouin², F. Waquet¹, F. Ducos¹, P. Goloub¹, J. Mollard², G. Myhre³, R. B. Skeie³, T. Takemura⁴, D. Tanré¹, F. Thieuleux¹ and K. Zhang^{5,6}
- [1] Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Université Lille 1, Villeneuve d'Ascq, France
- [2] Department of Meteorology, University of Reading, Reading, UK
- [3] Center for International Climate and Environmental Research Oslo (CICERO), Oslo, Norway
- [4] Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University, Fukuoka, Japan
- [5] Max Planck Institute for Meteorology, Hamburg, Germany
- [6] Pacific Northwest National Laboratory, Richland, WA, 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 5 AeroCom (Aerosol Comparisons between Observations and Models) models (GOCART, HadGEM3, ECHAM5-HAM2, OsloCTM2 and 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, some models overestimate the ACSSA. In accordance with recent recommendations of the black carbon refractive index, a higher prescription of the imaginary part allows a better comparison with POLDER's ACSSA.

5.3.1 Introduction

The large uncertainties related to aerosol radiative impacts are a major concern of climate study (Boucher et al., 2013; Myhre et al., 2013b). 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 affect the formation and the development of clouds (semi-direct effect). Aerosols have also an impact on the cloud lifetime and precipitations by acting as cloud condensation nuclei (indirect effects). Therefore, overlapping of aerosol and cloud layers are key situations for the understanding of the aerosol impacts on the Earth-system.

The South East Atlantic Ocean (SEAO) is a particularly suitable region to analyze 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 transported westward to the coast. The smoke plumes are frequently observed above the semi-permanent deck of stratocumulus clouds over the ocean. 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 of the reduction of the 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 South East Atlantic Ocean and can reach instantaneous values larger than +130 W.m⁻² (De Graaf et al., 2012; Peers et al., 2015). However, global aerosol models do not reproduce such high DRE (De Graaf et al., 2014). Moreover, a large spread in the estimation of the DRE is observed within AeroCom (Aerosol Comparisons between Observations and Models) models in this region (Myhre et al., 2013a; 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. The ones from Torres et al. (2012) and Jethva et al. (2013) use observations from OMI (Ozone Monitoring Instrument) and MODIS (Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer), respectively, to simultaneously retrieve the Above-Clouds Aerosol Optical Thickness (ACAOT) and the Aerosol-Corrected Cloud Optical Thickness (ACCOT). Their applications have been limited to case studies because both algorithms rely on a prescription of an aerosol model, notably their Above-Cloud Single Scattering Albedo (ACSSA). Polarized radiances translate mostly the scattering process of the aerosol layer above liquid clouds (Waquet et al., 2009, 2013a). The global distribution of the ACAOT have been evaluated over one year from polarized observations acquired by POLDER (Polarization and Direction-

ality of Earth Reflectances - Waquet et al., 2013b) on board the satellite PARASOL (Polarization and Anisotropy of Reflectances for Atmospheric Science coupled with Observations from a Lidar - Tanré et al., 2011). POLDER has the advantage to measure not only polarized radiances, but also total radiances that are sensitive to the absorption of ACA. In order to fully exploit the potential of this instrument, the algorithm has been recently improved with total radiances (Peers et al., 2015) and now retrieves, in addition to the ACAOT, the ACSSA and the ACCOT. Those new remote sensing retrievals offer new possibilities to assess more aspects of the numerical simulations of aerosols. De Graaf et al. (2014) have carried out a comparison of the aerosol DRE obtained with SCIAMACHY (Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography) with the HadGEM2 model. However, a comparison of the aerosol properties (i.e. ACAOT and ACSSA) is necessary to understand the processes responsible of the diversity in models.

The study presented here aims at illustrating the potential of the new POLDER products to constrain the aerosol properties simulated by global models. The algorithm has been applied to the SEAO region during the fire season and the results are compared with the properties derived from 5 AeroCom models. Descriptions of the POLDER retrieval, the analyzed models and the comparison methodology are given in Section 5.3.2. Results are presented in Section 5.3.3 and explanations of the observed differences between models and POLDER are discussed in Section 5.3.4. Finally, Section 5.3.5 summarizes the main findings.

5.3.2 Data and method

5.3.2.1 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 the aerosol size. The polarized signal of liquid clouds is characterized by a large peak at a scattering angle $\Theta \approx 140^{\circ}$ called the cloud bow and a small amount of polarization at side scattering angle (i.e. $\Theta < 130^{\circ}$). Moreover, because the polarized signature comes from the upper cloud layer, it no longer depends on the COT when COT is larger than 3 (Goloub et al., 2000). Aerosols above clouds affect polarization by creating a signal at side scattering angles and reducing the cloud bow intensity. Additional polarization at $\Theta < 130^{\circ}$ is mostly generated by the scattering process due to fine mode aerosols. The retrieval of the scattering AOT and the aerosol effective radius for the fine mode is based on the signal acquired at side scattering angle at 670 nm and 865 nm. The second part 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 by clouds is almost spectrally neutral from UV to shortwave infrared wavelengths (De Graaf 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). Knowing the scattering AOT and the aerosol size, radiances at 490 nm and 865 nm can be interpreted as a pair of COT and ACAAOT. Both parts of the retrieval are based on a Look Up Table approach. The retrieval is only attempted over homogeneous liquid clouds with optical thickness large enough to ensure the polarized signal saturation (COT \geq 3). More details about the algorithm and the applied filters are provided in the papers of Waquet et al. (2013a,b) 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 ACAOT and the ACSSA has been evaluated for each inversion by reporting these errors. Furthermore, the Cloud Top Height (CTH) has been estimated with POLDER based on the apparent O₂ 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).

5.3.2.2 AeroCom models and comparison methodology

The AeroCom project brings together international global aerosol models in order to better understand and reduce their diversity by using common experimental data protocols and emission inventories. Five models have supplied the daily profiles needed for this analysis: GOCART, HadGEM3, ECHAM5-HAM2, OsloCTM2 and SPRINTARS. Model descriptions are given in Table 5.2 and complementary information can be found in Myhre et al. (2013a). 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 a maximum overlap. As 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 to compute ACAOT and ACAAOT. Finally, models are sampled according to the availability of the POLDER retrieval. The impact of the CF threshold has been examined by considering thresholds of $15\% \pm 3\%$. Since the stratocumulus layer over the SEAO is well defined and well represented by models, we find a maximum mean change of $\pm 3\%$ only for the ACAOT and less than $\pm 1\%$ for the ACSSA.

Reference	Chin et al. (2000, 2002, 2009); Ginoux et al. (2001)	Bellouin et al. (2011, 2013)	Vignati et al. (2004); Stier et al. (2005); K. Zhang et al. (2012)	Myhre et al. (2007, 2009); Skeie et al. (2011)	Takemura et al. (2005) and Takemura et al. (2009)
Responsible	Thomas Diehl, Mian Chin	Nicolas Bellouin, James Mollard	Ulrike Lohmann, Philip Stier, Kai Zhang	Gunnar Myhre, Ragnhild B. Skeie, Terje Berntsen	Toshihiko Takemura
BC refractive index	1.75 - 0.44i	1.85 - 0.71i	1.85 - 0.71i	Variable and mixture with OC	1.75 - 0.44i
BC and OC Lifetime (days)	BC: 6.1 OC: 5.0	BC: 4.1 OC: 4.0	BC: 5.9 POA: 6.4	BC: 6.3 OM: 5.1	BCPOM: 5.9
Aerosol injection over the Southern Africa	Biomass emission in the boundary layer	Biomass emission in the boundary layer	Maximum emission height around 2 km over (Dentener et al., 2006)	Emission injection height from project RETRO (Schultz et al., 2007), between 0 and 5 km	Emission of carbonaceous aerosol from biomass burning below around 3km (Takemura et al., 2000)
; Meteorology	GEOS-4 DAS (Goddard Earth Observing System version 4 Data Assimilation System), reanalysis for year 2006	ERA Interim data for 2008, nudged	Model nudged with ECMWF analysis for the year 2006	ECMWF reanalysis from the Integrated Forecast System (IFS) model for year 2006	NCEP/NCAR reanalysis (temperature and horizontal wind), nudged (year 2006)
Levels	30	& 7.0	31	09	26
Resolution	2.5° × 2.0°	$1.8^{\circ} \times 1.2^{\circ}$	$1.8^{\circ} \times 1.8^{\circ}$	$2.8^{\circ} \times 2.8^{\circ}$	$1.1^{\circ} \times 1.1^{\circ}$
Type	CTM	GCM	GCM	CTM	GCM
Model	GOCART-v4	HadGEM3-A	ЕСНАМ5- НАМ2	OsloCTM2- v2	SPRINTARS- v384

Table 5.2 – Model general description. (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).

5.3.3 Results

The comparison between POLDER and AeroCom models is performed in terms of CTH, ACAOT and ACSSA at 550 nm over the SEAO region for the fire season 2006. Figure 5.10 shows the ACAOT and ACSSA time series from June to October. Variation of the POLDER ACAOT is consistent with the DRE seasonality observed by De Graaf 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 better 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 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 ± 0.02 . All 5 models reproduce the temporal evolution of the ACSSA, which is most likely due to the seasonal variation of biomass burning black carbon emissions. Two model behaviors can be distinguished. On the one hand, OsloCTM2 and SPRINSTARS give higher ACSSA estimations with mean value of 0.90 and 0.94. On the other hand, 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 is more difficult to retrieve the ACSSA when the ACAOT is small.

For the rest of the analysis, we will focus on August and September, when the aerosol load above clouds is largest. Figure 5.11 shows the POLDER and the modeled ACAOT and ACSSA. POLDER retrieves the largest ACAOT next to the coast for latitudes between 0° and 10°S. Averaged ACSSA lower than 0.86 are observed between 10°S and 20°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 in part helped by the nudged meteorology in the models. The spatial distribution of the ACSSA is also well reproduced, except for GOCART, which obtains the lowest ACSSA at latitudes under 20°S, associated with the lowest ACAOT.

Figure 5.12 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 (Fig. 5.12a), 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.

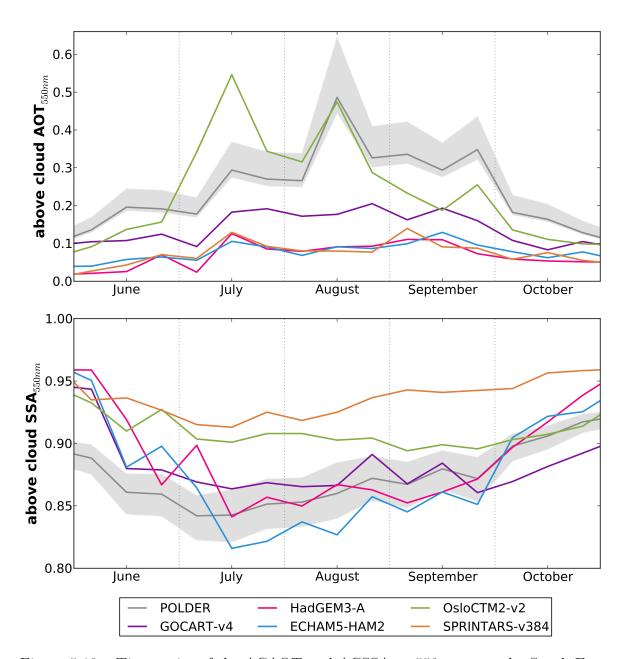


Figure 5.10 – Time series of the ACAOT and ACSSA at 550 nm over the South East Atlantic Ocean (5°N-30°S; 20°E-20°W) for the fire season 2006. Each point corresponds to a 10-day average. The gray zone corresponds to the POLDER retrieval uncertainty.

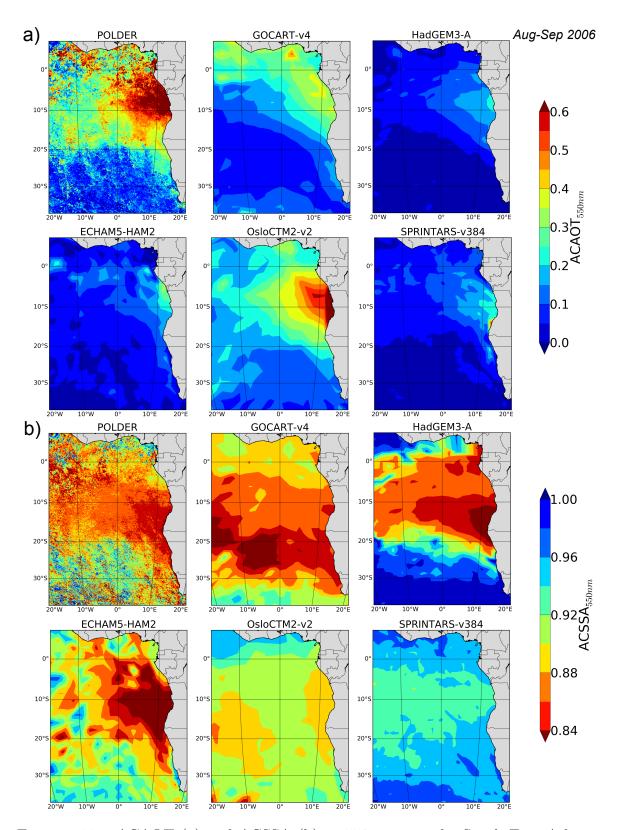


Figure 5.11 – ACAOT (a) and ACSSA (b) at $550\,\mathrm{nm}$ over the South East Atlantic Ocean from August to September 2006.

However, the CTH derived from the models are situated within a reasonable range of values, which validates our cloud definition in the models.

The POLDER ACAOT has a large temporal variability (Fig. 5.12b), 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 rather narrow. This lack of large aerosol loads above clouds is one reason that prevents these models from giving high instantaneous DRE values (De Graaf et al., 2014).

Fig. 5.12c shows only the ACSSA of events with the largest ACAOT, in order to compare the ACSSA of events with the most important radiative impact potentially. The POLDER distribution peaks at 0.87 ± 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 ± 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 rather sharp (SD of 0.010 and 0.016). In order to assess the validity of the POLDER comparison, AERONET level 2.0 SSA retrievals for inland sites of the Southern Africa in August and September have been co-located with SSAs from models. The dataset stretches from 1995 to 2014, which represents 483 successful retrievals. Figure 5.12d displays the PDF obtained for clear-sky SSA. The distribution for ECHAM5-HAM2 is not shown because data was 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 Fig. 5.12d than in Fig. 5.12c. It can be explained by aging processes during the aerosol transport from land to ocean and by the contribution of aerosols from other sources. Otherwise, POLDER brings the same constraint as AERONET with much more datapoints: OsloCTM2 and SPRINTARS overestimate the SSA while GOCART and HadGEM3 are closer to the retrievals.

5.3.4 Discussion

The differences between the modeled ACAOT and ACSSA explain in part the large spread of the aerosol radiative impact over the SEAO (Myhre et al., 2013a). Furthermore, this comparison suggests that AeroCom models underestimate the aerosol DRE above clouds – although the diversity in modeled cloud albedo will also contribute – because they underestimate the amount of aerosols and/or overestimate the ACSSA. In this section, the reasons of the diversity in the modeled aerosol optical properties above clouds are investigated.

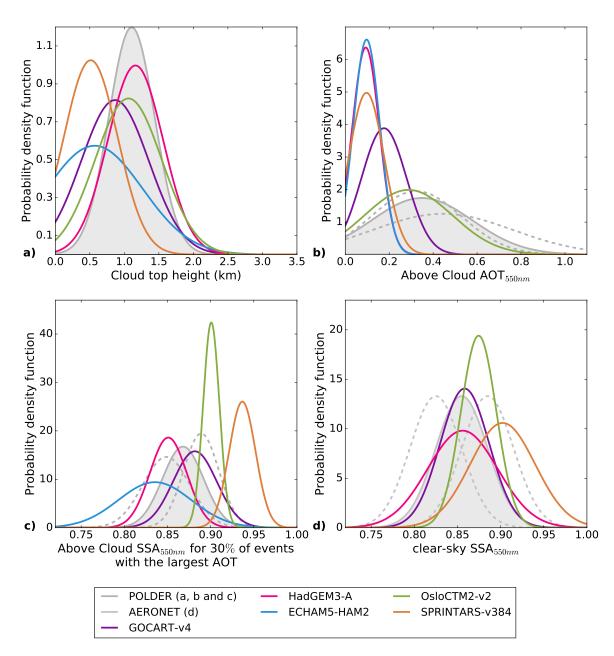


Figure 5.12 – (a, b and c): Probability Density Function (PDF) of aerosol and cloud properties in ACA scenes over the South East Atlantic Ocean (5°N-30°S; 20°E-20°W) for August to September 2006. Dashed gray lines correspond to the boundaries of the POLDER retrieval uncertainty for the ACAOT and the ACSSA. (d): PDF of clear-sky SSA. AERONET level 2.0 retrievals are compared with co-located SSA derived from AeroCom models for August to September 1995-2014 over Southern Africa (10°N-35°S; 40°E-10°W). Dashed gray lines correspond to the boundaries of the AERONET retrieval uncertainty for the SSA.

Firstly, the diversity in the modeled ACAOT could result from differences in the aerosol removal processes and transport or in the injection of emissions. Lifetimes of the organic carbon and the Black Carbon (BC) are given in Table 5.2. There seems to be no correlation between aerosol lifetime and ACAOT. Therefore, underestimation of the ACAOT does not seem to come from stronger removal processes. However, global lifetimes are probably not representative of aerosols in the SEAO region. In contrast, the injection height appears to be an important factor: OsloCTM2 is the only model to emit aerosols above the boundary layer in Southern Africa and it is associated with the largest ACAOT. Indeed, the model-based analysis of Veira et al. (2015) has shown that the only a small fraction of plumes reach the free troposphere. The aerosol vertical distribution has been qualitatively assessed next to the sources $(20^{\circ}\text{N}-20^{\circ}\text{S}; 20^{\circ}\text{E}-30^{\circ}\text{E})$ by calculating the mean extinction height diagnostic Z_{α} (Koffi et al., 2012). In August to September, OsloCTM2 has a Z_{α} of 2.08 km, which is comparable to the 2.03 km observed by CALIOP over approximately the same area (20°N-20°S; 0°E-45°E) in September-November (Koffi et al., 2012). For other models, aerosols are located at lower altitudes with a Z_{α} of 1.44, 1.30, 1.33 and 1.22 km for GOCART, HadGEM3, ECHAM5-HAM2 and SPRINTARS, respectively. Consequently, a correct Z_{α} is important to simulate a realistic distribution of ACAOT. However, the vertical aerosol profile is controlled by both injection height and vertical transport in a model-dependent way, suggesting that model calibration is necessary.

Secondly, our study reveals the large diversity in the modeled ACSSA. ECHAM5-HAM2 and HadGEM3 are the models that better reproduce the spatial distribution and the mean value of the ACSSA. They both prescribe a high imaginary part of the BC refractive index (0.71) following the recommendation of Bond and Bergstrom (2006, - Table 5.2). 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 (WCP, 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 has been estimated for August-September over the SEAO. The ratios for HadGEM3, OsloCTM2 and SPRINTARS are similar (5.4%, 6.2% and 6.1%), 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 lognormal number size distribution with a geometric mean radius of $0.12 \,\mu\mathrm{m}$ and a standard deviation of 1.30 which is consistent with the measurements performed during the SAFARI 2000 campaign (Haywood et al., 2003b). 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.

5.3.5 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 testbed 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. In this analysis, it has been demonstrated that the properties of aerosols above clouds are associated with a large variability in the models. On the one hand, 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. On the other hand, the comparison reveals that models with more absorbing BC tends to better reproduce the low ACSSA observed by POLDER. By either underestimating the aerosol load or the aerosol absorption, all five models underestimate the ACAAOT inducing an underestimation of the aerosol DRE over the SEAO. This study demonstrates the efficiency of the POLDER method to constrain key aerosol parameters in global aerosol models. The comparison has notably highlighted the importance of the injection heights, the vertical transport and the 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 of major interest. When additional information about the cloud vertical profile is provided by the models (e.g. the liquid and the frozen water content, 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 cloud would increase the understanding of the factors responsible of the 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 hazardous for complex cloud covers such as mixed phase clouds or heterogeneous clouds. Once again, additional cloud information is necessary to perform such an analysis.

Acknowledgments

The CaPPA project (Chemical and Physical Properties of the Atmosphere) 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 Nord-Pas de Calais and the European Funds for Regional Economic Development (FEDER)

This work was supported by the Programme National de Télédétection Spatiale (PNTS, http://www.insu.cnrs.fr/pnts), grant n°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.

Chapitre 6

Conclusions et perspectives

6.1 Conclusions générales sur ce travail

Pour comprendre et mesurer l'impact climatique des aérosols, il importe de connaître et modéliser leur concentration et leurs propriétés microphysiques. Actuellement, l'incertitude sur leurs effets reste particulièrement forte dans les scènes nuageuses à cause du manque d'information sur les aérosols et les nuages pour contraindre les modèles climatiques. Si les instruments de télédétection passive, ayant une couverture quasi-globale et journalière, offrent un avantage certain pour l'observation des aérosols, leurs méthodes opérationnelles de restitution des propriétés des aérosols sont actuellement restreintes aux situations en ciel clair uniquement. Ces dernières années, des algorithmes en mode recherche ont été développés pour étudier les aérosols au-dessus des nuages, notamment dans la région du sud-est de l'océan Atlantique. Ces méthodes utilisent des mesures de luminances totales, sensibles à la variation spectrale de l'absorption des aérosols. Elles présentent alors deux limitations majeures. D'une part, elles ne permettent pas de détecter les aérosols peu absorbants au-dessus des nuages et, d'autre part, la restitution de l'épaisseur optique aérosols nécessite de faire une hypothèse sur le niveau d'absorption des particules.

L'interprétation des mesures passives polarisées constitue une approche alternative pour la détection des aérosols dans les scènes nuageuses car elles présentent une sensibilité aux processus de diffusion des particules. Dans le chapitre 3, une méthode innovante de restitution des propriétés des aérosols et des nuages a été décrite. L'épaisseur optique des aérosols, leur albédo de simple diffusion et l'épaisseur optique du nuage sont déterminées à partir des luminances polarisées et totales mesurées par POLDER. La méthode d'inversion est divisée en deux étapes. La première, basée sur les travaux de Waquet et al. (2013a), consiste à déterminer l'épaisseur optique de diffusion des aérosols et aussi la taille des particules du mode fin à partir de la création de polarisation observée

aux angles de diffusion inférieures à 130°. Dans la seconde partie, l'épaisseur optique d'absorption des aérosols et l'épaisseur optique du nuage sont déduites simultanément à partir des luminances totales et des propriétés des aérosols déterminées précédemment. Comme la méthode ne repose pas sur la prescription d'un modèle d'aérosols, elle a pu être appliquée aux aérosols absorbants au-dessus des nuages du sud-est de l'océan Atlantique, aux aérosols peu absorbants provenant des feux de biomasse sibérienne, comme aux poussières minérales sahariennes.

Le chapitre 4 était consacré au calcul de la perturbation radiative directe des aérosols à partir des propriétés des aérosols et des nuages restituées. Dans le but de réduire les temps de calcul, nous avons analysé les performances d'une méthode de calcul approché basée sur les travaux de Lenoble et al. (1982). Nous avons constaté que cette approche n'était pas adaptée aux fortes charges d'aérosols absorbants alors que ces évènements sont ceux pour lesquels l'effet radiatif le plus important est attendu. De plus, la méthode nécessitait de considérer le nuage comme un réflecteur lambertien. La validité de cette approximation et la précision du calcul dépendent alors fortement des conditions d'éclairement et de l'épaisseur optique du nuage. Pour assurer une précision satisfaisante sur la valeur du forçage, dans toutes les configurations, une procédure alternative a été mise en place. Celle-ci est basée sur le précalcul, à l'aide d'un code de transfert radiatif, de tables de flux.

Pour valider indirectement nos résultats, nous avons comparé les flux radiatifs calculés à partir des paramètres aérosols et nuages avec les flux CERES. Des résultats encourageants ont été obtenus pour les cas d'aérosols de feux de biomasses africaine et sibérienne. Cependant, une analyse sur plus de cas serait nécessaire pour expliquer les écarts observés sur le dernier cas d'étude, relatif à des poussières minérales. Enfin, nous envisageons de comparer les perturbations radiatives calculées à partir des propriétés restituées avec celles déterminées à partir des mesures de l'instrument SCIAMACHY au sud-est de l'océan Atlantique.

Nous proposions, dans le chapitre 5, d'évaluer les propriétés des aérosols au-dessus des nuages simulées par les modèles AeroCom en les comparant à celles mesurées avec POLDER. La première difficulté consistait à définir les nuages dans les modèles à partir des données mises à notre disposition, à savoir, les profils verticaux de fraction nuageuse. Nous avons constaté que la connaissance de la phase thermodynamique du nuage dans les modèles avait un impact important sur les résultats de notre comparaison à l'échelle globale. Or, nous ne disposions que des profils de phase des nuages pour le modèle HadGEM3-A. Si nous avons procédé en extrapolant ces profils de phase aux autres modèles, il est évident que le manque d'information sur les nuages simulés constitue une limitation de notre analyse. D'autre part, nous avons constaté qu'une résolution journalière des sorties de modèles était plus adaptée pour la comparaison avec les observations POLDER. Notre premier exercice de comparaison a révélé une grande variabilité de l'épaisseur optique aérosols simulées par les différents modèles, au-dessus des nuages.

Dans un second temps, nous avons focalisé notre analyse sur le sud-est de l'océan Atlantique, région où la couche nuageuse est bien représentée dans les modèles. Parmi les 5 modèles étudiés, 4 d'entre eux sous-estiment la quantité d'aérosols au-dessus des nuages et ne reproduisent pas les évènements de fortes charges en aérosols observés par POLDER. Pour ces modèles, l'altitude des aérosols au niveau des sources est trop basse, ce qui pourrait être causé par des hauteurs d'injection trop faibles ou une mauvaise paramétrisation du transport vertical. Nous avons également constaté que les modèles sous-estimaient l'absorption, dans cette région. Conformément aux recommandations récentes sur l'indice de réfraction du carbone noir (Bond et Bergstrom, 2006), notre analyse a révélé que les modèles qui reproduisent le mieux les valeurs d'albédo de diffusion mesurées par POLDER prescrivent une partie imaginaire de l'indice plus élevée.

6.2 Perspectives et premiers résultats à l'échelle planétaire

Nous déclinons nos perspectives sur deux plans : d'une part, l'aspect méthodologique, et de l'autre, un aspect plus géophysique avec l'analyse des propriétés et de l'impact des aérosols.

6.2.1 Évolutions d'ordre méthodologique

La présence d'aérosols au-dessus des nuages peut entraîner des biais sur les propriétés des nuages restituées à partir de mesures passives acquises dans le visible et aux courtes longueurs d'onde de l'infrarouge. En effet, les méthodes opérationnelles de restitution des propriétés des nuages ne prennent pas en compte les aérosols. Dans le cas d'aérosols absorbants, l'épaisseur optique nuage déterminée à partir de la méthode opérationnelle MODIS est généralement inférieure à notre estimation prenant en compte l'absorption de la couche d'aérosols. Haywood et al. (2004) ont montré que la présence d'aérosols du mode grossier au-dessus des nuages pouvait également entraîner des biais sur la restitution de la distribution en taille des particules nuageuses. Pour les évènements de poussières minérales, l'épaisseur optique aérosol que nous restituons pourrait également être utilisée pour améliorer la méthode de restitution du rayon effectif des gouttelettes nuageuses avec les données de MODIS, paramètre important pour l'étude de l'effet indirect des aérosols.

L'impact des différentes hypothèses retenues dans notre méthode a été étudié à l'aide d'une étude de sensibilité. L'analyse a montré que la méthode permettait d'obtenir une valeur réaliste de l'épaisseur optique d'absorption pour les aérosols. En général, l'erreur

sur l'albédo de diffusion est inférieure à 0.03. Cependant, un biais négatif de l'ordre de -0.055 a été observé pour des évènements intenses d'aérosols absorbants. Ces biais proviennent de l'hypothèse selon laquelle les luminances polarisées sont peu sensibles à l'absorption des aérosols. Pour améliorer l'algorithme, il est nécessaire de considérer plusieurs niveaux d'absorption en polarisation. Une première solution serait d'inverser simultanément les luminances totales et polarisées. Une seconde consiste à itérer sur la détermination de l'absorption (le processus de détermination de l'épaisseur optique aérosol est répété jusqu'à ce que la solution converge sur une valeur de l'albédo de diffusion). Cependant, ces deux alternatives nécessiterait un temps de calcul plus long.

Actuellement, la méthode en place restitue les propriétés des aérosols et des nuages au-dessus de l'océan. Sans ajouter trop de complexité, elle pourrait être adaptée aux évènements au-dessus des surfaces continentales en prenant en compte l'albédo de la surface dans les tables de luminances précalculées. Les propriétés de surface déterminées par l'algorithme GRASP (Generalized Retrieval of Aerosol and Surface Properties - Dubovik et al., 2014) pourraient aussi être utilisées, en données d'entrée de la méthode.

Notre travail a permis d'accéder aux paramètres descriptifs aérosols nécessaires pour le calcul de leur perturbation radiative. Pour le moment, la procédure mise en place calcule l'effet direct instantané des aérosols. Mais celle-ci pourrait être adaptée pour calculer le forçage radiatif intégré sur la journée, en prenant en compte l'évolution diurne des paramètres nuageux (Min et Z. Zhang, 2014). Enfin, les taux d'échauffement pourraient être calculés en combinant les propriétés des aérosols et des nuages aux profils verticaux produits par CALIOP.

L'examen de la validité les résultats obtenus au-dessus des nuages a été envisagé. La continuité entre les propriétés aérosols restituées au-dessus des nuages et en ciel clair a été examinée sur quelques cas d'étude. Cette analyse devrait être généralisée, bien que les résultats doivent être considérés avec prudence. En effet, en ciel clair, les aérosols sont observés sur toute la colonne atmosphérique. Les propriétés des aérosols et des nuages restituées à partir des mesures POLDER peuvent également être comparée à celles obtenues avec d'autres instruments du A-Train. Jethva et al. (2014) ont intercomparé les épaisseurs optiques aérosols déterminées avec POLDER (à partir des luminances polarisées), OMI, MODIS et CALIOP pour un cas d'étude au sud-est de l'océan Atlantique. Une comparaison plus exhaustive entre les propriétés des aérosols déterminées avec POLDER et CALIOP (méthode dite de « dépolarisation ») est en cours d'analyse. La méthode de « dépolarisation » ne nécessitant pas d'hypothèses microphysiques, cette démarche devrait permettre d'évaluer la pertinence des modèles utilisés dans l'algorithme développé pour POLDER. Des modèles supplémentaires pourraient être considérés dans le futur, notamment des modèles de poussières volcaniques (Waquet et al., 2014).

6.2.2 Premiers résultats au-dessus des nuages à l'échelle planétaire

La réalisation d'une climatologie des aérosols situés au-dessus des nuages constituait l'un des objectifs de notre étude. Ce travail est en cours et la méthode d'inversion a été appliquée à l'échelle globale aux mesures POLDER de l'année 2006. Une première analyse des résultats obtenus, non seulement en terme de propriétés des aérosols et des nuages, mais également en terme de perturbation radiative, est résumé ci-après.

Il est plus difficile de déterminer l'absorption de la couche d'aérosols lorsque de le nuage situé sous la couche d'aérosols ne rétrodiffuse pas suffisamment le rayonnement et lorsque la charge en aérosols est faible. Pour s'assurer que l'inversion a été faite dans des conditions optimales, nous avons filtré les résultats à partir d'un critère empirique basé sur l'épaisseur optique de diffusion des aérosols et sur l'épaisseur optique du nuage.

Les propriétés moyennes aérosols et nuages pour l'année 2006 sont présentées sur la figure 6.1. Les moyennes trimestrielles sont également disponnibles et reportées sur les figures de l'annexe A. Notons qu'en filtrant selon la sensibilité des luminances à l'absorption des aérosols, nous rejetons des évènements associés à de faibles charges en aérosols, ce qui a pour effet d'augmenter la moyenne de l'épaisseur optique et la valeur absolue de l'effet direct. Nous avons choisi, dans la suite, de présenter ces premiers résultats en les déclinant par bassin océanique. En complément, la figure 6.2 présente les histogrammes de l'effet direct des aérosols obtenus pour 3 régions associées à un nombre élevé d'observations.

L'océan Atlantique

Entre les mois de mai et août, nous détectons des aérosols des nuages au niveau de l'océan Atlantique tropical. Leur distribution en taille est dominée par le mode grossier, ce qui correspond, parmi les modèles d'aérosols considérés pour l'inversion, au modèle de poussières minérales. Les poussières désertiques provenant du Sahara sont fréquemment transportées à travers l'océan Atlantique (J. R. Herman et al., 1997; Haywood et al., 2003a). Comme ces aérosols sont peu absorbants et que les nuages qu'ils surplombent ont une épaisseur optique faible, la perturbation radiative calculée pour cette région est neutre, voire faiblement négative.

Le sud-est de l'océan Atlantique est sous l'influence des aérosols de feux de biomasse africaine de juin à octobre avec un pic en août (cf. paragraphe 5.3). Les aérosols ont une épaisseur optique supérieure à 0.2 pour plus de 28% des observations. À mesure que les aérosols s'éloignent de la côte africaine, nous observons un accroissement de la taille des particules (exposant d'Angström de 2.5 à 1.7) ainsi qu'une diminution de l'absorption (albédo de diffusion de 0.77 à 0.84 à 865 nm). Comme le suggèrent Sayer et al. (2014), ces aérosols pourraient avoir été affectés par des processus de vieillissement au cours leur

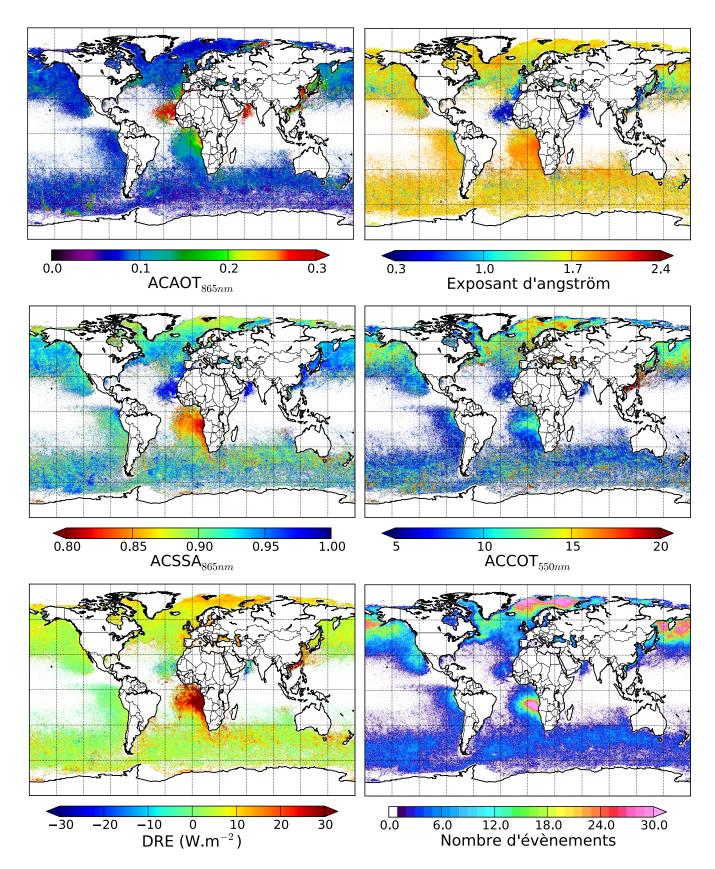


FIGURE 6.1 – Propriétés des aérosols et des nuages et effet direct instantané des aérosols au-dessus des nuages pour l'année 2006. (ACAOT : épaisseur optique des aérosols au-dessus des nuages - ACSSA : albédo de simple diffusion des aérosols au-dessus des nuages - ACCOT : épaisseur optique du nuage corrigée de l'absorption des aérosols - DRE : effet radiatif direct)

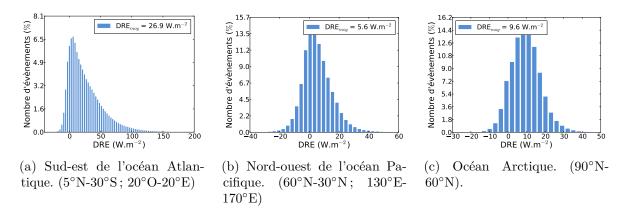


FIGURE 6.2 – Histogramme de l'effet direct (DRE) pour l'année 2006. Chaque barre a une épaisseur de $5 \,\mathrm{W.m^{-2}}$.

transport. Situés au-dessus de nuages relativement épais, ces aérosols très absorbants sont associés à un effet de réchauffement important. Près des côtes, un forçage instantané moyen de l'ordre de 100 W.m⁻² est observé. L'histogramme des valeurs de l'effet direct, dans cette région, est représenté sur la figure 6.2a. En moyenne, nous observons un effet direct de +26.9 W.m⁻². En utilisant les données de SCIAMACHY, De Graaf et al. (2014) ont observé un effet radiatif de +25.9 W.m⁻² entre juillet et août 2006, période qui regroupe la majorité de nos observations pour cette région. De plus, pour les deux méthodes, les forçages obtenus sont généralement compris entre -10 et +130 W.m⁻². Si ces deux résultats sont proches, il est nécessaire de préciser que les analyses ne sont pas faites sur le même échantillon d'évènements. Contrairement à la méthode employée pour traiter les mesures de SCIAMACHY, les résultats obtenus avec POLDER n'incluent ni les nuages peu épais (épaisseur optique inférieure à 3), ni les couvertures nuageuses fractionnées. De plus, les deux instruments n'observent pas les évènements au même moment. La différence d'angle solaire et la variation diurne de la couverture nuageuse (Min et Z. Zhang, 2014) peuvent entraîner des écarts dans le calcul du forçage.

L'océan Pacifique

Dans le nord-ouest de ce bassin, de nombreux évènements sont détectés entre avril et septembre, avec des épaisseurs optiques aérosols de l'ordre de 0.15 à 865 nm. Sur les cartes d'exposant d'Angström, le flux de poussières désertiques en provenance de Mongolie est clairement identifié aux latitudes autour de 40°N. Au niveau de la mer d'Okhotsk et de Béring, les aérosols associés à des exposants d'Angström de 2.0 et à des albédos de diffusion de 0.92 à 865 nm sont issus des feux de végétations boréales. On observe également des aérosols faiblement absorbants (ACSSA_{865nm} \approx 0.98) avec des exposants d'Angström un peu plus faible (\sim 1.6) issus de la pollution asiatique. Enfin, les exposants d'Angström de l'ordre de 1.2 correspondent à des situations de mélanges. Au-dessus de nuages relativement épais (ACCOT \approx 13), les aérosols observés dans le nord-ouest de l'océan Pacifique sont associés à une perturbation radiative moyenne

faiblement positive de $+5.6 \,\mathrm{W.m^{-2}}$, avec des valeurs généralement comprises entre -15 et $+30 \,\mathrm{W.m^{-2}}$ (Fig. 6.2b).

Au début de l'année 2006, plusieurs évènements associés à des épaisseurs optiques aérosols fortes ont été détectés plus au sud, à proximité de la côte-est chinoise. Nous retrouvons à la fois des poussières minérales et des aérosols plus fins, avec un exposant d'Angström valant 1.2 en moyenne. Les fines particules présentent un albédo de diffusion d'environ 0.90 à 865 nm. Des résultats similaires ont été obtenus avec POLDER, en ciel clair (Waquet et al., en préparation). Ces aérosols pourraient provenir des feux agricoles intenses, principalement observés au début du printemps Fu et al. (2012) et Sayer et al. (2014). Ces panaches d'aérosols produisent un forçage radiatif de l'ordre de +20 W.m⁻².

L'océan Arctique

Entre le Groenland et la Russie occidentale, nos résultats attestent de la présence d'une couche d'aérosols d'épaisseur optique moyenne proche de 0.08, au printemps et au début de l'été 2006. L'exposant d'Angström très variable (entre 0.4 et 2.2) suggére un mélange complexe d'aérosols. Les mesures in situ réalisées pendant la campagne aéroportée ASTAR2000 (Hara et al., 2003) indiquent que l'« Artic Haze » est composé d'aérosols sulfatés, de suies et de poussières minérales. Au printemps 2006, les conditions météorologiques particulières dans le nord de l'Europe sont à l'origine d'un transport efficace d'aérosols générés par des feux en Europe de l'est vers l'Arctique (Stohl et al., 2007). Au mois de mai, les sites AERONET de Minsk et Toravere indiquent que ces aérosols sont absorbants, avec un albédo de diffusion de 0.92 à 440 nm (Lund Myhre et al., 2007). Au-dessus des nuages, l'albédo de diffusion est d'environ 0.90 à 865 nm, ce qui est cohérent avec les observations POLDER réalisées en ciel clair (Waquet et al., en préparation). La figure 6.2c montre une grande variabilité de l'effet direct au-dessus des nuages dans cette région, avec une amplitude s'étalant de -20 à +50 W.m⁻², pour une valeur moyenne positive de +9.6 W.m⁻².

Les autres bassins

Au troisième trimestre, des évènements intenses de poussières minérales sont détéctés au niveau de la mer d'Arabie. Nos résultats montrent que ces aérosols, en provenance de la corne de l'Afrique et de la péninsule arabique, produisent un refroidissement (perturbation radiative d'environ $-9 \,\mathrm{W.m^{-2}}$).

Entre 30°S et 60°S au printemps comme en été, et entre 30°N et 60°N en hiver comme en automne, nous observons des bandes clairsemées associées à un faible nombre d'observations ainsi qu'à de faibles épaisseurs optiques aérosols et nuages. Pour ces quelques évènements, nos résultats indiquent une forte absorption par les aérosols (ACSSA_{865nm} ≈ 0.80) et l'effet direct est de l'ordre de +15 W.m⁻². Rappelons que les situations où nuage et aérosols sont optiquement fin s'avèrent bien moins favorables

à une restitution précise de l'albédo de diffusion. Pour ces évènements, il y a peu de variabilité sur la valeur de l'exposant d'Angström, généralement située vers 1.6. Ceci pourrait être expliqué par un manque de sensibilité des mesures de polarisation à la distribution en taille des aérosols. Par suite, l'erreur sur le modèle d'aérosols pourrait affecter sur l'albédo de diffusion. Compte-tenu du faible nombre d'observations, les propriétés des aérosols ne devraient pas être considérées comme représentatives de ces régions et sont à prendre avec précaution. En été, des aérosols détectés au sud-est de Madagascar sont associés à des exposants d'Angström de l'ordre de 2.0. Ces aérosols proviennent probablement des feux de biomasse d'Afrique.

6.2.3 Première synthèse et enjeux à venir

Nos résultats révèlent qu'une quantité importante d'aérosols est transportée audessus des nuages dans plusieurs régions du monde, principalement au sud-est de l'océan Atlantique, au nord-ouest de l'océan Pacifique et au nord de l'Europe. Les distributions et la saisonnalité des caractéristiques de ces aérosols, et notamment de leur absorption, sont cohérentes avec les évènements et avec les valeurs publiées dans la littérature. Nous avons notamment observé que les aérosols de feux de biomasse en Afrique sont les plus absorbants (ACSSA_{865nm} ≈ 0.82). Dans le nord de l'océan Pacifique, nous détectons des aérosols de feux de biomasses sibériennes moyennement absorbants (ACSSA_{865nm} ≈ 0.92) et des particules de pollution très peu absorbantes (ACSSA_{865nm} ≈ 0.98). En mers de Norvège et de Barrents, nos résultats indiquent la présence d'aérosols absorbants (ACSSA_{865nm} ≈ 0.90) d'origine d'Europe de l'est. Cependant, l'analyse des évènements plus marginaux suggèrent qu'il est nécessaire de nouveaux critères de sélection pour garantir la fiabilité des résultats obtenus.

S'agissant de l'effet direct, nous montrons que, dans l'ensemble, la présence d'une couche d'aérosols au-dessus des nuages est associée à une perturbation radiative positive. Au sud-est de l'océan Atlantique, l'effet direct est en moyenne de +26.9 W.m⁻², ce qui est cohérent avec les valeurs observées avec SCIAMACHY dans cette région (De Graaf et al., 2014). Au niveau de l'océan Arctique et au nord-ouest de l'océan Pacifique, la moyenne de l'effet direct est également positive (+9.6 et +5.6 W.m⁻², respectivement). Cependant, des valeurs négatives sont régulièrement obtenues dans ces régions ainsi que dans celles dominées par les poussières minérales.

Notons que la mise en place d'un filtre sur la sensibilité des luminances à l'absorption aérosol entraîne une diminution du nombre d'évènements échantillonnés. Les observations rejetées correspondent à des situations où les épaisseurs optiques du nuage et des aérosols sont faibles et associées à une perturbation radiative faible également. Si, pour ces évènements, la restitution de l'albédo de diffusion est plus incertaine, il n'en est pas de même pour les épaisseurs optiques du nuage et des aérosols. L'effet direct des aérosols pourrait alors être calculé en choisissant leur l'albédo de diffusion à partir

d'une climatologie. La mise en place de cette dernière nécessite d'appliquer la méthode d'inversion à l'archive complète des mesures POLDER/PARASOL, traitement en cours au centre de gestion et de traitement de données ICARE. Cette climatologie sur 5 ans permettra d'analyser les tendances saisonnières ainsi que la variabilité interannuelle des propriétés des aérosols au-dessus des nuages. À terme, ces efforts permettront également de calculer le forçage des aérosols au-dessus des nuages, à cette échelle de temps, et de le comparer aux valeurs obtenues précédemment en ciel clair.

La mise en place de cette climatologie permettra d'approfondir la comparaison aux modèles numériques. Pour mieux comprendre la variabilité de l'effet direct des aérosols au-dessus des nuages prédit par les modèles, il serait également intéressant d'élargir la comparaison à l'albédo du nuage. Une telle étude nécessiterait de disposer de plus d'informations sur les nuages dans les modèles.

En caractérisant en détail les propriétés physico-chimiques des aérosols, les campagnes de mesures jouent également un rôle important dans la compréhension de l'impact climatique des aérosols. Avec la présence quasi-permanente de stratocumulus et l'influence des aérosols de feux de biomasse africaine de juin à octobre, le sud-est de l'océan Atlantique constitue un laboratoire naturel pour l'étude des interactions des aérosols avec le rayonnement et les nuages. En été 2016, débutera une campagne de mesure internationale sur la côte namibienne. Le projet britannique CLARIFY-2016 (CLoud-Aerosol-Radiation Interactions and Forcing: Year 2016) a ouvert la voie aux projets nord-américains ORACLES (Observations of Aerosols above CLouds and their intEractionS) et LASIC (Layered Atlantic Smoke Interactions with Clouds) et au projet français AEROCLO-SA (AErosol RAdiation and CLOuds in Southern Africa). En améliorant notre niveau de connaissances sur les propriétés des aérosols et leurs processus d'interaction avec le rayonnement et les nuages, les mesures de télédétection et in situ réalisées permettront d'améliorer la représentation des aérosols dans les modèles numériques et contribueront à réduire l'incertitude sur les effets direct, semi-direct et indirect des aérosols. De plus, la campagne de mesure sera l'occasion de mettre au défi les méthodes satellitaires de restitutions des propriétés des aérosols, des nuages et de la perturbation radiative des aérosols au-dessus des nuages. Le polarimètre OSIRIS (Observing System Including PolaRisation in the Solar Infrared Spectrum), développé au LOA, sera notamment impliqué dans la partie aéroportée du projet AEROCLO-SA. Ce précurseur du futur instrument satellitaire 3MI (Multi-directional, Multi-polarization and Multispectral Instrument) permet, à l'instar de POLDER, de mesurer les champs de luminances totales et polarisées pour plusieurs longueurs d'onde comprise de l'UV au proche infrarouge (de 440 à 2200 nm). La méthode d'inversion développée dans notre travail sera appliquée aux mesures aéroportées de la campagne.

L'Arctique est la région la plus atteinte par le changement climatique. Notre analyse a révélé la présence d'aérosols au-dessus des nuages dans les régions océaniques aux hautes latitudes. Néanmoins, l'étude des aérosols en Arctique par télédétection est complexe du fait de l'albédo important de la glace et des surfaces enneigées. Notre

méthode ne permet pas, par exemple, de restituer l'absorption des aérosols au-dessus de ces surfaces. Le suivi des concentrations en aérosols, la caractérisation de leurs propriétés et de leur origine constituent des enjeux importants pour la compréhension du climat en Arctique. Des observations de terrain pourraient être envisagées, notamment dans le cadre du chantier Arctique.

Annexe A

Propriétés et effet direct des aérosols au-dessus des nuages en 2006

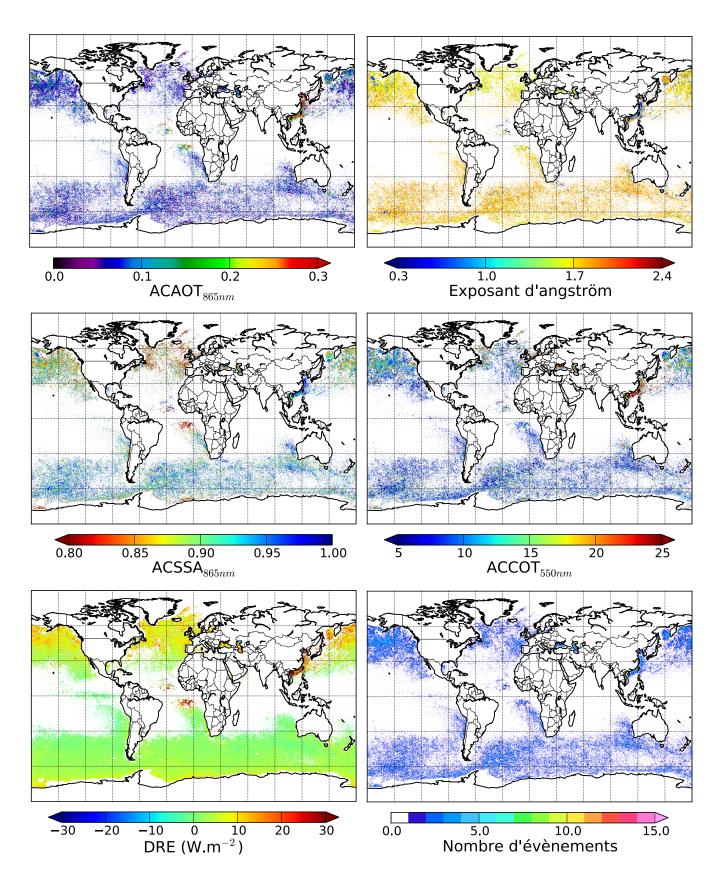


FIGURE A.1 – Propriétés des aérosols et des nuages et effet direct instantané des aérosols au-dessus des nuages pour les mois de janvier à mars 2006. (ACAOT : épaisseur optique des aérosols au-dessus des nuages - ACSSA : albédo de simple diffusion des aérosols au-dessus des nuages - ACCOT : épaisseur optique du nuage corrigée de l'absorption des aérosols - DRE : effet radiatif direct)

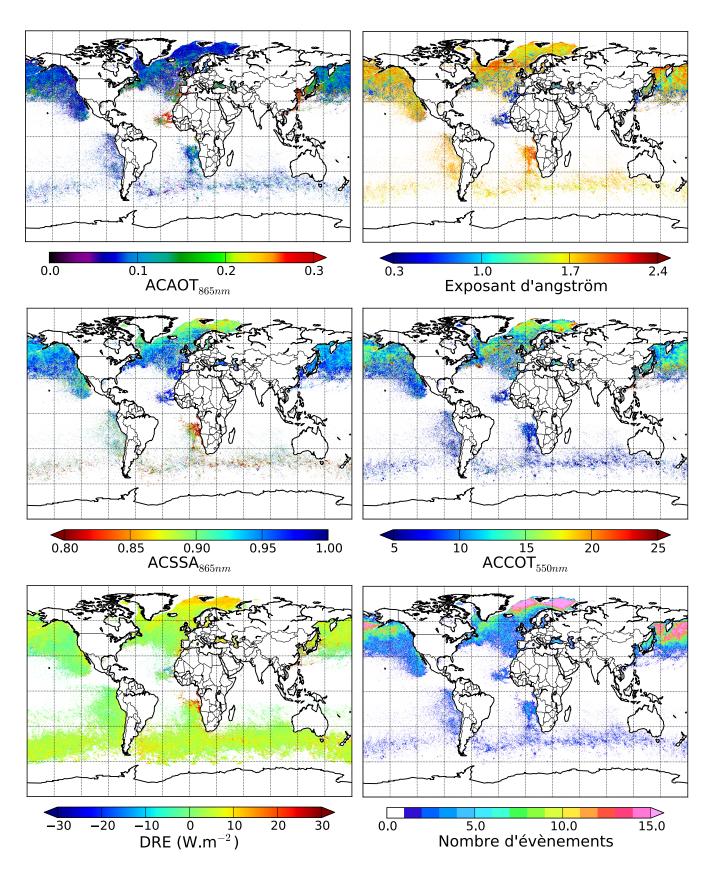


FIGURE A.2 – Idem à la figure A.1 pour les mois d'avril à juin 2006.

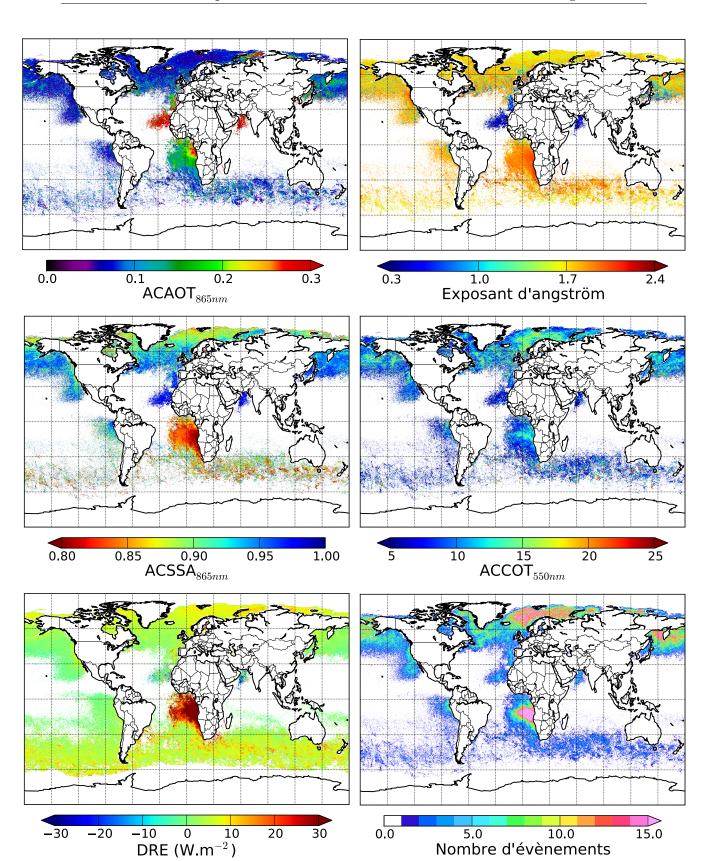


FIGURE A.3 – Idem à la figure A.1 pour les mois de juillet à septembre 2006.

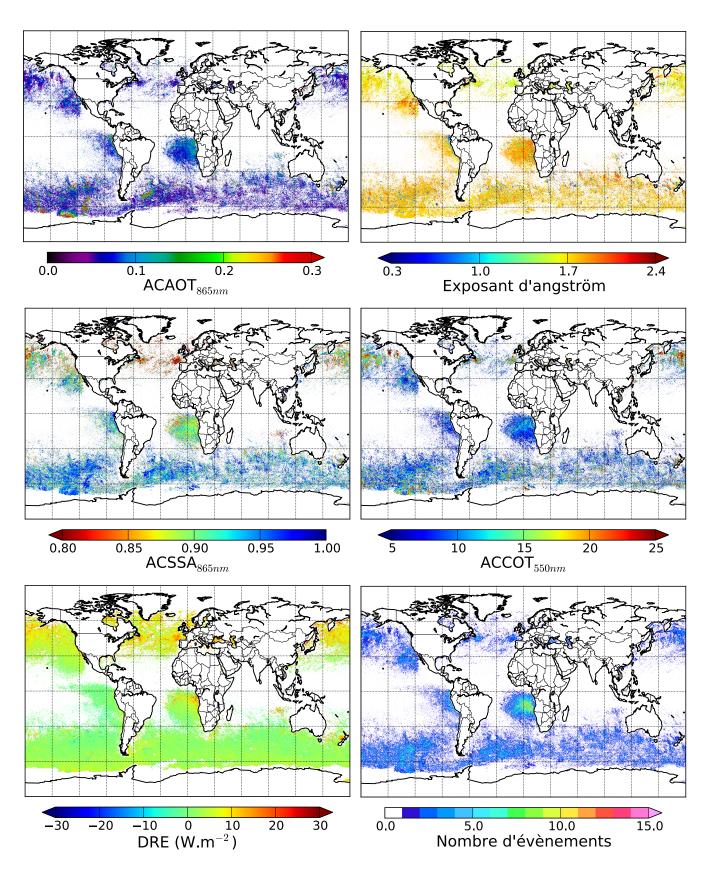


FIGURE A.4 – Idem à la figure A.1 pour les mois d'octobre à décembre 2006.

Annexe B

Absorption of aerosols above clouds from POLDER/PARASOL measurements and estimation of their direct radiative effect

Atmos. Chem. Phys., 15, 4179–4196, 2015 www.atmos-chem-phys.net/15/4179/2015/ doi:10.5194/acp-15-4179-2015 © Author(s) 2015. CC Attribution 3.0 License.





Absorption of aerosols above clouds from POLDER/PARASOL measurements and estimation of their direct radiative effect

F. Peers¹, F. Waquet¹, C. Cornet¹, P. Dubuisson¹, F. Ducos¹, P. Goloub¹, F. Szczap², D. Tanré¹, and F. Thieuleux¹

Correspondence to: F. Peers (fanny.peers@ed.univ-lille1.fr) and F. Waquet (fabien.waquet@univ-lille1.fr)

Received: 6 August 2014 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 9 October 2014 Revised: 25 March 2015 – Accepted: 30 March 2015 – Published: 22 April 2015

Abstract. This study presents an original method to evaluate key parameters for the estimation of the direct radiative effect (DRE) of aerosol above clouds: the absorption of the the cloud albedo. It is based on multi-angle total and polarized radiances both provided by the A-train satellite instrument POLDER - Polarization and Directionality of Earth Reflectances. The sensitivities brought by each kind of measurements are used in a complementary way. Polarization mostly translates scattering processes and is thus used to estimate scattering aerosol optical thickness and aerosol size. On the other hand, total radiances, together with the scattering properties of aerosols, are used to evaluate the absorption optical thickness of aerosols and cloud optical thickness. The retrieval of aerosol and clouds properties (i.e., aerosol and cloud optical thickness, aerosol single scattering albedo and Ångström exponent) is restricted to homogeneous and optically thick clouds (cloud optical thickness larger than 3). In addition, a procedure has been developed to process the shortwave DRE of aerosols above clouds. Three case studies have been selected: a case of absorbing biomass burning aerosols above clouds over the southeast Atlantic Ocean, a Siberian biomass burning event and a layer of Saharan dust above clouds off the northwest coast of Africa. Besides these case studies, both algorithms have been applied to the southeast Atlantic Ocean and the results have been averaged during August 2006. The mean DRE is found to be $33.5 \,\mathrm{W}\,\mathrm{m}^{-2}$ (warming). Finally, the effect of the heterogeneity of clouds has been investigated and reveals that it affects mostly the retrieval of the cloud optical thickness and not greatly the aerosols properties. The homogenous cloud assumption used in both the properties retrieval and the DRE processing leads to a slight underestimation of the DRE.

1 Introduction

The quantification of the aerosol radiative impact is one of the largest sources of uncertainty in global climate models (Myhre et al., 2013b). These uncertainties are mainly related to aerosols in cloudy conditions through direct, semi-direct and indirect effects. The last two describe the modifications of cloud microphysics due to interactions between clouds and aerosols (Bréon et al., 2002). In particular, the enhancement of the number of cloud condensation nuclei results in a reduction of cloud droplet size, leading in an enhancement of the cloud albedo (Twomey, 1974, 1977), a prolongation of their lifetime and a decrease of precipitation (Albrecht, 1989; Ramanathan et al., 2001). The semi-direct effect refers to changes in cloud formation attributable to the aerosol influences on the vertical stability of the atmosphere (Ackerman et al., 2000; Johnson et al., 2004; Koren et al., 2004; Kaufman et al., 2005). Finally, the direct effect corresponds to the modification of the amount of solar radiation scattered back to space by the clouds due to the presence of an aerosol layer. Figure 1 illustrates the difference in albedo in the top-of-theatmosphere $\Delta \rho$ caused by an aerosol layer versus the albedo of the surface underneath. It has been calculated using the approximate expression given by Lenoble et al. (1982):

$$\Delta \rho = \rho - \rho_{\rm s} = \tau (\varpi_0 (1 - g) (1 - \rho_{\rm s})^2 - 4(1 - \varpi_0) \rho_{\rm s}) \quad (1)$$

 ρ_s is the surface albedo, and ρ , the albedo above the aerosol layer. The aerosol optical thickness τ is related to the amount of particles and corresponds to the sum of the absorption optical thickness τ_{abs} and the scattering one τ_{scatt} . Single scattering albedo (SSA) ϖ_0 describes the relative contribution of aerosol scattering to extinction (i.e., scattering and absorption, $\varpi_0 = \tau_{scatt}/\tau$). Finally, the aerosol asymmetry factor g

¹Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Université Lille 1, Villeneuve d'Ascq, France

²Laboratoire de Météorologie Physique, Clermont-Ferrand, France

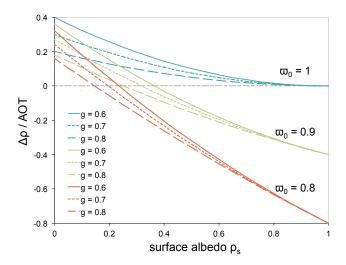


Figure 1. Modification of the albedo at the top of the atmosphere $\Delta \rho$ caused by the presence of an aerosol layer versus the albedo of the surface underneath ρ_s calculated with the approximate expression given by Lenoble et al. (1982). Darker green lines correspond to purely scattering-only aerosols ($\varpi_0 = 1$), lighter green to aerosols moderately absorbing ($\varpi_0 = 0.9$), orange lines are for absorbing aerosols ($\varpi_0 = 0.8$) and g is the asymmetry factor.

characterizes the preferential direction of the scattered light. The difference of albedo and the shortwave direct radiative effect (DRE) of aerosols are directly proportional. A positive difference of albedo means that the surface appears brighter from the top of the atmosphere with aerosols (domination of the scattering process) and thus, it results in a cooling effect (DRE < 0). This is the case for aerosols above a dark surface as, for instance, over ocean. Over bright conditions, such as clouds, the sign of the difference of albedo strongly depends on the absorption of the aerosol layer (i.e., the single scattering albedo): absorbing aerosols can lead to a darkening (warming effect), but for particles which scatter enough, the resulting forcing can be positive (cooling effect). As a consequence, the improvement of the DRE estimation is driven by the accurate knowledge of the albedo of the surface underneath, the amount of aerosols and their level of absorption.

In order to constrain numerical models, satellite aerosol retrievals provide essential information on aerosol and cloud properties, spatial distribution and trends. However, the study of above-cloud aerosol layers is a recent line of research and the radiative effects of aerosols located above clouds remain unconstrained because most current satellite retrievals are limited to cloud-free conditions. In addition, the retrieval of cloud properties that determine the cloud albedo (i.e., the cloud optical thickness and the droplet effective radius) is impacted by the presence of an aerosol layer above (Haywood et al., 2004; Wilcox et al., 2009; Coddington et al., 2010) and consequently, it biases the estimation of the DRE. Active sensors like the Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization (CALIOP) are dedicated to the analy-

sis of the atmospheric vertical profile. An operational algorithm (Winker et al., 2009, 2013; Young and Vaughan, 2009) as well as two alternative research methods (i.e., the depolarization ratio, Hu et al., 2007, and the color-ratio method, Chand et al., 2008) enable the retrieval of the above-cloud aerosol optical thickness (ACAOT). Nevertheless, passive sensors have also shown the ability to extract information from above-cloud aerosol (ACA) measurements and take advantage of their wide spatial coverage. Based on the capacity of aerosols to absorb the UV radiation reflected by the clouds, Torres et al. (2012) have developed a method to calculate the UV aerosol index and, under some assumption on the aerosol properties, to retrieve the ACAOT as well as the aerosol-corrected cloud optical thickness (ACCOT) with the Ozone Monitoring Instrument (OMI). The amount of particles above clouds and the ACCOT can also be retrieved simultaneously using measurements in the visible and shortwave infrared spectrum from the Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS), thanks to the color-ratio method developed by Jethva et al. (2013).

Contrary to total radiances, polarized measurements are primarily sensitive to the single scattering process and no longer depend on the optical thickness of the cloud when it is thick enough. Waquet et al. (2009, 2013a) have developed a method to retrieve the ACAOT at two wavelengths and therefore the Angström exponent, using polarized radiances from the Polarization and Directionality of Earth Reflectances (POLDER). Jethva et al. (2014) have carried out a multi-sensor comparison of the above-cloud AOT retrieved from different sensors on board NASA's A-train satellite for a biomass burning event off the southwest coast of Africa. Considering the different kinds of assumptions and measurements used to retrieve the ACAOT, results have shown good consistency over the homogeneous cloud fields. Since aerosol and cloud properties are known, it is possible to process the DRE of aerosols above clouds with a radiative transfer model (Chand et al., 2009; Peters et al., 2011; Costantino and Bréon, 2013; Meyer et al., 2013). However, most of the ACAOT retrievals presented above do not evaluate the aerosol single scattering albedo. In contrast, the DRE of aerosols above clouds can also be evaluated without making assumptions about aerosol microphysics thanks to the algorithm developed by De Graaf et al. (2012) for Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography (SCIAMACHY) measurements. Hyperspectral reflectance from polluted cloud conditions is converted into flux and subtracted from clean cloud conditions. The latter is modeled thanks to cloud properties derived from SCIA-MACHY measurements in the shortwave infrared spectrum. While this method is expected to work efficiently for finemode aerosols as their interactions at longer wavelengths are minimal or even non-existent, it may not work for coarsemode dust aerosols due to their radiative influence at longer wavelengths.

All those retrieval methods have shown that both total and polarized radiances are sensitive to ACA. The POLDER instrument on PARASOL satellite has the benefit of measuring both for several viewing angles and wavelengths (Tanré et al., 2011). In the next section of this paper, we will evaluate the contribution brought by the combination of the scattering information provided by polarization and the absorption one given by total radiances. We will explore an improved retrieval method for ACA conditions over ocean, based on the work of Waquet et al. (2013a) for the three main parameters required to estimate the DRE: the ACAOT, the ACCOT and the SSA of ACA. The previous algorithm has already demonstrated its ability to detect different kinds of particles (i.e., biomass burning, pollution and dust) over clouds at a global scale (Waquet et al., 2013b). In the third section, we will present a module for the processing of ACA DRE. Beyond their types, aerosol absorption properties are expected to vary a lot depending on space, time and formation processes (Dubovik et al., 2002) and thus, resulting in different radiative responses. Both algorithms have been applied to three events with contrasted aerosol properties: absorbing biomass burning aerosols off the southwest coast of Africa, and scattering ones from Siberia and Saharan dust. Then, aerosol and cloud properties as well as the DRE have been evaluated and averaged during August 2006 over the southeast Atlantic Ocean. This region is a key area for the study of aerosol impacts in cloudy skies since biomass burning particles from Africa are usually transported westward over clouds during the dry season. The case studies and the monthly results will be shown in Sect. 4. Thereafter, the impact of cloud heterogeneity on our estimation of ACA parameters and the DRE will be examined in Sect. 5. Conclusion will be drawn in Sect. 6.

2 Retrieval method

2.1 Description

Polarized measurements can be used to extract information from ACA conditions (Waquet et al., 2009, 2013a; Hasekamp, 2010; Knobelspiesse et al., 2011) owing to the specific signal produced by cloud liquid droplets. Figure 2 illustrates polarized radiances processed with the SOS (successive order of scattering) code (Deuzé et al., 1989) for a cloudy atmosphere, with (colored lines) and without aerosols above (black line). It should be noted that, in this paper, the radiance refers to the normalized quantity according to the definition given by Herman et al. (2005). Regarding the clean cloud signal, the amount of polarized light generated by the cloud is very weak at side scattering angles (70–130°). Also, it does not depend on the COT as long as it is larger than 3.0. The aerosol model used for the polluted cloud cases corresponds to fine-mode particles with an effective radius of $0.10 \,\mu\text{m}$. The scattering AOT is fixed (i.e., AOT_{scatt} = 0.18)

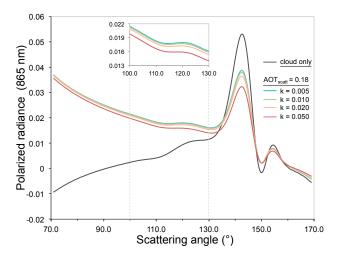


Figure 2. Simulated polarized radiance at 865 nm plotted against the scattering angle. Black line corresponds to the cloud only (COT = 10, $r_{\rm eff}$ = 10 µm). Colored lines are for an above-cloud aerosol layer. The effective radius of aerosols is 0.10 µm. Several absorption AOT values (i.e., various k) have been considered but the scattering AOT is fixed at 0.18. The inset focuses on polarized radiances of aerosols above clouds for scattering angles between 100 and 130°. Complementary information about vertical distributions and properties of aerosols and clouds can be found in Table 1 (see polarized look up table (LUT)).

while the level of absorption (i.e., AOT_{abs}) has been stretched through the complex part of the refractive index k. The scattering of light by fine-mode aerosols causes the creation of an additional polarized signal at side scattering angles. Moreover, in accordance with the sensitivity analysis performed by Waquet et al. (2013a), the effect of absorption processes on polarization is weak for any scattering angles lower than 130° . Thus, the signal is mostly attributable to scattering processes. At the same time, cloud water droplets produce a large peak of polarization at about 140° that is strongly attenuated by aerosols for ACA events. These two effects can be used to derive aerosol scattering properties from multidirectional polarized measurements like the ones provided by POLDER.

In the case of clean sky condition (i.e., without aerosols), the total radiances scattered by cloud water droplets are relatively spectrally independent from the UV to the shortwave infrared (SWIR) part of the spectrum (De Graaf et al., 2012). At the same time, those wavelengths are sensitive to aerosol effects (i.e., absorption and scattering) whose spectral behaviors depend strongly on the microphysics of the particles (e.g., size, chemical composition, shape). Consequently, the presence of an above-cloud aerosol layer affects the signal that can be measured by satellite instruments: the spectral tendency of aerosol absorption leads to a modification of the apparent color of the clouds. Simulations of the upwelling radiance at 490 and 865 nm for ACA events have been processed with a radiative transfer code based on the adding—

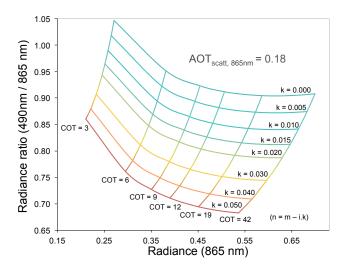


Figure 3. Radiance ratio $L_{490\mathrm{nm}}$ / $L_{865\mathrm{nm}}$ as a function of the radiance at 865 nm. Signals have been simulated for aerosols with an effective radius of 0.10 µm, an effective radius of cloud droplet of 10 µm (for more information about aerosol and cloud properties and vertical distribution, see Table 1, total radiance LUT column). The scattering AOT is set and several absorption AOT and several COT values are considered. Calculations have been carried out for a solar zenith angle $\theta_{\rm S} = 41.3^{\circ}$, a viewing angle $\theta_{\rm V} = 41.3^{\circ}$ and a relative azimuth $\varphi_{\rm T} = 180^{\circ}$.

doubling method (De Haan et al., 1987). In the same way as Fig. 3 in the study of Jethva et al. (2013), Fig. 3 here highlights the color ratio effect. The radiance ratio (L_{490}/L_{865}) is plotted against the SWIR radiance (L_{865}) for several cloud optical thickness (COT) values and for aerosols with an effective radius of 0.1 µm. Similarly to the previous figure, the scattering AOT is fixed and several absorption AOT values are considered. The complex part of the refractive index k is set equal at both wavelengths. This plot clearly illustrates the enhancement of the spectral contrast with absorption. For a given value of the radiance ratio, the 865 nm band provides the sensitivity to the COT. That is to say, radiances at 490 and 865 nm can be interpreted as a coupled ACCOT and absorption ACAOT as long as the scattering optical thickness of aerosol and their size are known.

2.2 POLDER data

The POLDER instrument is the main part of the PARASOL's payload (Polarization and Anisotropy of Reflectances for Atmospheric Science coupled with Observations from a Lidar) that have flown from 2004 to 2013, including 5 years as a part of the A-train constellation. It provides radiances for nine spectral bands between 443 and 1020 nm as well as polarization measurements over 3 (i.e., 490, 670 and 865 nm). Thanks to its two-dimensional charge-coupled device camera, the instrument acquires a series of images, which allow the target to be seen from up to 16 viewing angles. The ground spatial resolution of POLDER at nadir is

 5.3×6.2 km. A new version of Level 1 (v03.02) products was released by the CNES at the end of 2014 including an improvement of the radiometric calibration (Fougnie et al., 2007). However, the data used in this paper corresponds to the previous version (i.e., PARASOL Collection 2 v02.04).

2.3 Algorithm

The distinctive feature of the method presented here is to combine the information provided by both total and polarized multidirectional radiances from POLDER. The first step consists of estimating the scattering optical thickness and the aerosol size with polarization. We proceed with the look up table (LUT) approach described by Waquet et al. (2013a). Polarized radiances at 670 and 865 nm have been computed with the SOS code (Deuzé et al., 1989) for seven models of aerosols that follow a lognormal size distribution (cf. Table 1). Six of them correspond to spherical aerosols from the fine mode with radius from 0.06 to 0.16 µm and assuming a complex refractive index of 1.47 - 0.01i. The last one is a nonspherical model for dust with a refractive index of 1.47 - 0.0007i. The retrieval of the scattering AOT is attempted for each 6 × 6 km POLDER's pixel when the COT given by MODIS is larger than 3.0. If fine-mode aerosols have been identified, the estimation of the scattering AOT is based on the polarized signal measured for scattering angle lower than 130°. At that point, a first estimation of the extinction AOT is made based on the absorption assumed for the selected aerosol model (i.e., k_{assumption}). Results are then subjected to several filters in order to improve their quality: data must be well fitted, clouds have to be homogeneous and both cloud edges and cirrus are rejected according to criteria based on POLDER and MODIS products. Filtered AOT values are then aggregated from 6×6 km to 18×18 km and pixels with a standard deviation (SD) of the AOT values larger than 0.1 are excluded in order to prevent cloud edge contamination. Eventually, the scattering AOT is recovered using the SSA of the aerosol model with the same absorption assumption used at first (i.e., $k_{assumption}$):

$$\tau_{\text{scatt},\lambda} = \varpi_{0,\lambda,k_{\text{assumption}}} \tau_{\text{ext},\lambda,k_{\text{assumption}}}, \tag{2}$$

 τ_{scatt} is the scattering AOT, τ_{ext} the extinction AOT retrieved with polarization, ϖ_0 the SSA corresponding to the model used for the retrieval and λ referring to the wavelength. We consider that the aerosol size corresponds to the one of the model with the nearest model (i.e., not interpolated).

The second part of the method aims at evaluating the absorption of ACA and the ACCOT using multidirectional radiances at 490 and 865 nm and the information on properties already provided by polarization. Once again, the process consists of a comparison with radiance LUT. For computing time reasons, we have chosen to process radiances with the adding–doubling code (De Haan et al., 1987) instead of the one used for the polarized LUT (i.e., SOS code). The models are based on the seven ones previously considered

Table 1. Aerosol and cloud model properties used to compute the polarized and total radiance LUT of the POLDER algorithm.

	Polarized LUT	Total radiance LUT		
	Aerosols models			
Vertical distribution Fine mode:	Gaussian layer with a mean altitude of 3 km	homogeneous layer between 2 and 3 km		
Size distribution	lognormal distribution with $\sigma_{\rm f} = 0.4$			
	$r_{\rm eff} = 0.06 \text{ to } 0.16 \mu$	ım (by 0.02 µm steps)		
Refractive index	1.47 - i.0.01	1.47 - i.k with $k = 0.00$ to 0.05 (by 0.0025 step)		
Dust:				
Size distribution	bimodal lognormal di	stribution with $\sigma_{\rm f} = 0.4$		
	$r_{ m eff.fine}$ =	$= 0.35 \mu \text{m}$		
		$= 2.55 \mu \text{m}$		
Refractive index	1.47 - i.0.0007	1.47 - i.k		
		$k_{865\text{nm}} = 0.0007$		
		$k_{490\text{nm}} = 0.0 \text{ to } 0.004 \text{ (by } 0.0005 \text{ step)}$		
	Cloud models			
Vertical distribution	homogeneous layer from 0 to 0.75 km	homogeneous layer from 0 to 1 km		
Size distribution				
	$r_{\rm eff} = 5$ to 26 µm (by 1 µm step)	$r_{ m eff} = 10\mu{ m m}$		
Refractive index	$m_{r,490 { m ni}}$	$_{\rm m} = 1.338$		
		$_{\rm m} = 1.331$		
		m = 1.330		

with several imaginary parts of the refractive index k (cf. Table 1). For the fine mode, k varies from 0.00 to 0.05 and it is assumed to be the same at both wavelengths because only a weak variation of this parameter is expected between the used bands for this type of aerosols. Conversely, the dust complex part of the refractive index should have a pronounced spectral dependence because of the presence of iron oxide that absorbs blue and UV radiation. Consequently, we have set the value of k to 0.0007 at 865 nm, based on the result obtained with the research algorithm developed in Waquet et al. (2013a). The absorption at 490 nm is evaluated at a k range from 0.000 to 0.004. Considering cloud properties (cf. Table 1), the droplet effective size distribution is considered to follow a gamma law with an effective variance of 0.06. The cloud droplet effective radius is set to 10.0 µm since the wavelengths selected for the retrieval do not have a noticeable sensitivity to this parameter (Rossow et al., 1989). The cloud top height is fixed at 1 km and the aerosol layer is located between 2 and 3 km. Finally, the reflection of the solar radiation by the ocean surface (i.e., the sunglint), which can be significant for optically thin clouds, is taken into account by considering surface wind speeds from 2.0 to $15.0 \,\mathrm{m\,s^{-1}}$ (Cox and Munk, 1954). The input data are the multidirectional radiances at 490 and 865 nm from 6 × 6 km from POLDER (i.e., the whole directional information is used), the scattering ACAOT and the aerosol model previously determined and the surface wind speed from modeling. The retained solution is the one that minimizes the

least square error term ε :

$$\varepsilon = \sum_{i=1}^{N_{\Theta}} \sum_{j=1}^{N_{\lambda}} \left[L_{ij}^{\text{meas}}(\Theta) - L_{ij}^{\text{calc}}(\Theta) \right]^{2}, \tag{3}$$

L referring to measured (meas) and calculated (calc) radiances and Θ being the scattering angle. In accordance with the operational product of POLDER clear-sky retrieval, the Ångström exponent α is calculated from the optical thicknesses τ at 670 and 865 nm using the expression below:

$$\alpha = -\frac{\log(\tau_{670\text{nm}}/\tau_{865\text{nm}})}{\log(670.0/865.0)}.$$
(4)

An example of total radiances measured at 490 and 865 nm by POLDER for one pixel is given in Fig. 4a and b, respectively. The estimation of the cloud and aerosol properties has been derived thanks to the method described hereinbefore. Aerosols belong to the fine mode with an ACAOT of 0.142 at $865 \, \text{nm}$ and a complex part of the refractive index k at 0.035. The COT is evaluated at 12.4. Figure 4 also illustrates the signal modeled during the retrieval for different levels of absorption with an ACCOT corresponding to our solution. For completely scattering particles (i.e., k = 0.00), one can note that SWIR and visible radiances reach approximately the same levels. In that case, conditions appear almost spectrally neutral. When the absorption AOT is increased (i.e., increasing of the complex part of the refractive index k), both radiances decrease. However, one can notice the increasing gap between visible and SWIR radiances as the absorption grows called the color ratio effect. Since aerosol absorption has a spectral signature, it produces stronger absorption effects at shorter wavelengths than at longer ones.

2.4 Sensitivity analysis

The method developed hereinbefore requires assumptions at different stages of the retrieval. The aim of this section is to analyze the resulting impact on the retrieval. To serve this purpose, POLDER's observations have been modeled with the same radiative transfer code used for the LUT, considering several aerosol and cloud models. These modeled signals have been used as inputs for the algorithm. It implies that errors due to the polarization part of the retrieval are investigated and then impacted on the total radiances step.

We first examine the assumption regarding aerosol properties. In order to retrieve the scattering AOT, it is assumed that polarized measurements are weakly sensitive to aerosol absorption. This approximation is expected to become less consistent when the aerosol layer is very absorbing (i.e., large AOT and low SSA values). This leads to an error in the estimation of the scattering AOT that could affect the retrieval of the SSA. The second assumption concerns the real part of the refractive index m fixed at 1.47 for the retrieval. To assess the impact of these assumptions, we have considered three absorbing aerosol models with different refractive indices n: 1.42 - 0.03i, 1.47 - 0.03i and 1.52 - 0.03i corresponding to an SSA at 865 nm of 0.735, 0.772 and 0.801, respectively. The real parts of the refractive indices have been chosen to be representative of the variability observed within the aerosol fine mode (Dubovik et al., 2002). Aerosols have an effective radius of 0.1 µm and their mean altitude is 3 km. The cloud layer used to model the signal has a top altitude of 0.75 km, an optical thickness of 10 and a droplet effective radius of 10 µm. Total and polarized radiances have been simulated for absorbing aerosol layers with increasing AOT. Finally, the DRE of aerosols has been processed using the radiative transfer code GAME (Global Atmospheric ModEl) (Dubuisson et al., 2004), based on the properties of the modeled conditions on the one hand, and those retrieved by the algorithm on the other hand. In Fig. 5, the aerosol and cloud parameters retrieved (green lines) and used in the reference states (i.e., input simulations - grey lines) are plotted as a function of the AOT at 865 nm. The middle column (i.e., n = 1.47 - 0.03i) shows the biases due to the approximation that polarized radiances translate the scattering process only while the left and the right ones (i.e., n = 1.42 - 0.03i and 1.52 - 0.03i) also present the effect due to the assumption on the real part of the refractive index.

- The first two rows display the total and the scattering AOT. For m = 1.42 and 1.47, the algorithm underestimates the AOT. This error comes from the underestimation of the scattering AOT during the polarized part of the retrieval. For AOT values lower than 0.2, we observe

- a bias around 20% on the AOT. In the case of extreme events, with AOT values around 0.6 (i.e., 1.5 at 550 nm), the AOT is underestimated by 26.7% for m = 1.47 and 24.1% for m = 1.42. Conversely, the algorithm overestimates the AOT when m = 1.52. It has to be noted that the retrieved aerosol radius is larger than the one used to model the signal (0.12 µm instead of 0.1 µm). In that case, the largest error in the AOT (i.e., 25.3%) is observed at AOT = 0.2. Then, the error slowly decreases with the AOT because of the compensation by aerosol absorption, reaching 16.8% at AOT = 0.6.
- − The third and fourth rows of Fig. 5 show the absorption AOT and the SSA values versus the total AOT. In spite of the error in the scattering AOT, it is interesting to observe that the biases on the absorption AOT values are small. Because of the sensitivity of total radiances to the absorption of the aerosol layer, the algorithm compensates for the bias of the scattering AOT due to the first part by an error in the SSA. As a consequence, a negative (positive) error in the scattering AOT goes together with an underestimation (overestimation) of the SSA. For AOT = 0.6, a bias of −0.055 was observed for m = 1.42 and m = 1.47, and a bias of +0.033 was observed for m = 1.52.
- Plots of the fifth row represent the retrieved COT. They reveal that both the approximation regarding polarized radiance and the assumption on the real part of the refractive index have a limited impact on the COT estimation. In this analysis, the largest COT bias is ± 0.3 .
- − Finally, the bottom row focuses on the evolution of the DRE of aerosols with the modeled AOT. The DRE estimated with aerosol and cloud properties retrieved by the algorithm is close to the one processed with the properties of the modeled conditions. This can be explained by the reliable estimation of the aerosol layer absorption: as suggested by Eq. (1), the absorption AOT is the leading parameter in the estimation of the DRE for large values of the albedo of the conditions underneath. The largest bias (+9.7 W m⁻²) has been obtained for AOT = 0.6 and m = 1.52. Otherwise, the bias is always lower than ± 6.4 W m⁻² for AOT values lower than 0.2 and lower than ± 1 W m⁻² for AOT values lower than 0.1.

Secondly, we look at the assumption on the size distribution of the coarse-mode particles. For the retrieval, we only consider one model for dust. It is defined by a bimodal lognormal size distribution with an Ångström exponent of 0.36 (Waquet et al., 2013a). The signal has been modeled for coarse-mode particles with an Ångström exponent of 0.02 and 0.6 and an AOT = 0.6. The method appears to allow for a consistent evaluation of the SSA at 490 nm (error < 1 %) in spite of the error in the optical thickness and on the Ångström exponent

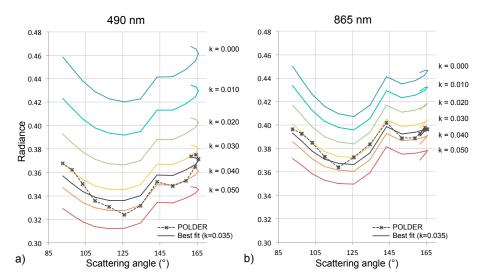


Figure 4. Example of measured and simulated total radiances for one pixel at $490 \,\mathrm{nm}$ (a) and $865 \,\mathrm{nm}$ (b). The dashed black lines are for the measurements and the continuous black ones are for the simulated signals corresponding to the solution (i.e., COT = 12.4; k = 0.035; AOT = 0.14). Other colored lines correspond to the signal simulated for the same COT, the same scattering AOT values and for several k (i.e., different absorption AOT values).

(error in AOT around 24 % and in the Ångström exponent of 100 %).

The last assumption about aerosols that has been investigated concerns the vertical distribution of the aerosol layer. We have processed the signal for an aerosol top altitude of 4 and 6 km and the algorithm has retrieved the correct aerosol and cloud properties. In polarization, the bands used to retrieve the scattering AOT (i.e., 670 and 865 nm) are weakly impacted by the molecular contribution. Aerosols in the clouds do not contribute to the creation of a polarized signal at side scattering angles. Hence the polarized radiances are not impacted by the aerosol vertical distribution as long as the aerosol layer is distinct from the cloud.

Regarding the cloud hypothesis, we test the impact of considering only one cloud droplet effective radius $(r_{\rm eff,cld} = 10 \, \mu \rm m)$ for the estimation of the aerosol absorption and the ACCOT by modeling the signal for $r_{\text{eff,cld}} = 6$ and 20 µm with a COT of 10. The approximation regarding the effective radius of cloud droplet is the main source of error in the COT estimation. While the error in the COT due to aerosol hypothesis does not exceed 3 %, this one may lead to a COT bias of ± 10 %, which is in agreement with the study of Rossow et al. (1989). However, statistical analysis of the conditions studied hereafter have shown that more than 70 % of the clouds have an effective radius ranging between 8 and 16 µm. Lastly, we have investigated the influence of the cloud top altitude by considering $z_{\text{top,cld}} = 2$ and 4 km. For each case, the algorithm has retrieved the correct parameters for clouds and aerosols.

3 Radiative effect estimation

As previously shown, the accurate knowledge of the aerosol and cloud properties is required for estimating the direct radiative forcing due to an above-cloud aerosol layer. At the top of the atmosphere (TOA), this instantaneous DRE $\Delta F(\theta_s)$ is expressed as a flux difference given by

$$\Delta F(\theta_{s}) = \left(F^{\downarrow}(\theta_{s}) - F^{\uparrow}_{\text{cloud+aer}}(\theta_{s}) \right)$$

$$- \left(F^{\downarrow}(\theta_{s}) - F^{\uparrow}_{\text{cloud}}(\theta_{s}) \right)$$

$$= F^{\uparrow}_{\text{cloud}}(\theta_{s}) - F^{\uparrow}_{\text{cloud+aer}}(\theta_{s}).$$
(5)

 $\theta_{\rm s}$ being the solar zenith angle, F^{\downarrow} the downward flux at the TOA, $F_{\rm cloud+aer}^{\uparrow}$ the upward flux when aerosols are present and $F_{\rm cloud}^{\uparrow}$ corresponds to the flux reflected by clouds with no aerosol above.

Since the approximate method described earlier (Eq. 1) could lead to results not accurate enough for coarse-mode particles, we have chosen to found our approach on exact calculations based on the radiative transfer code GAME (Dubuisson et al., 2004). Instantaneous shortwave radiative forcing (i.e., from 0.2 to 4 μ m) has been precomputed for several solar zenith angles. Regarding fine-mode aerosols, they are assumed to be only composed of black carbon. In other words, the imaginary part of the refractive index is constant in the shortwave (grey aerosols) and corresponds to the one retrieved by our algorithm. For dust aerosols, the spectral dependence of the absorption is based on the work of Balkanski et al. (2007), adjusting the UV imaginary part of the refractive index with the retrieved value at 490 nm. In addition to the aerosol and cloud properties derived using the

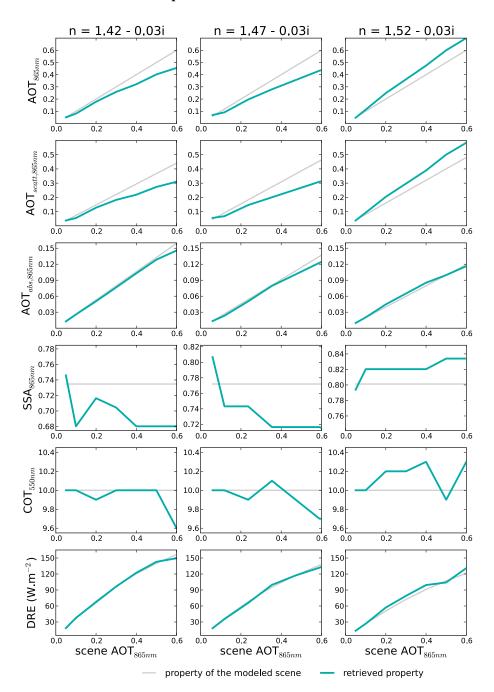


Figure 5. Sensitivity of the properties of ACA conditions with different aerosol models. From top to the bottom: total AOT, scattering AOT, absorption AOT and SSA at 865 nm, COT at 550 nm and the shortwave DRE of aerosols. Grey lines correspond to the properties of the actual modeled conditions and green lines to those retrieved by the algorithm. The aerosol model of the first column has a refractive index n equal to 1.42 - 0.03i, the second, n = 1.47 - 0.03i and the third, n = 1.52 - 0.03i. Aerosols have an effective radius of $0.1 \,\mu m$ and the effective radius of the cloud water droplets is $10 \,\mu m$.

methods described hereinbefore (i.e., ACCOT, ACAOT, the aerosol size and their absorption), the LUT takes into account several cloud droplet effective radii and atmospheric vertical distributions. Those latest are characterized by the cloud top height (considering an aerosol layer between 1 and 2 km above the cloud), the amount of absorbing gases (i.e., ozone

and water vapor) and the atmospheric model (i.e., the pressure, temperature and gases vertical profiles). The DRE is obtained by interpolation of the LUT.

Regarding the additional input data, the information about the cloud droplets size comes from MODIS (Nakajima and King, 1990). The cloud top height is derived from the

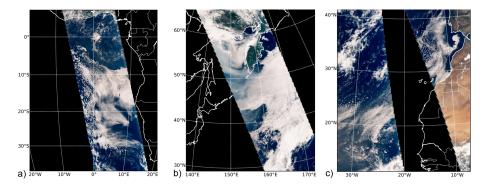


Figure 6. True color POLDER/PARASOL RGB composite (a) over the southeast Atlantic Ocean on 4 August 2008, (b) off the east coast of Russian on 3 July 2008 and (c) over the North Atlantic Ocean on 4 August 2008.

POLDER apparent O_2 cloud top pressure (Vanbauce et al., 2003) since the O_2 retrieval allows a reliable estimation of the cloud top height in the presence of an aerosol layer above (Waquet et al., 2009). The ozone and water vapor contents are given by meteorological modeling. Finally, the atmospheric vertical profile depends on the seasons and the geographic location (Cole et al., 1965; i.e., mid-latitude, tropical, sub-arctic summer and winter).

4 Results

4.1 Case studies

The RGB images of the three selected case studies are shown in Fig. 6. The first one (Fig. 6a) is related to a biomass burning event during the dry season in the south of Africa, the second (Fig. 6b) concerns Siberian biomass burning aerosols transported above clouds, and the last one (Fig. 6c) is about Saharan dust. For each case, the retrieved parameters (i.e., the ACAOT, the aerosol scattering albedo, their Ångström exponent and the ACCOT) will be shown as well as the estimation of the DRE.

4.1.1 African biomass burning aerosols

From June to October, biomass burning particles from manmade vegetation fires are frequently observed above the persistent deck of stratocumulus covers off the southwest coast of Africa. On 4 August 2008 (Fig. 6a), biomass burning aerosols were observed over clouds. Under the CALIOP track (not shown), the aerosol layer is located between 3 and 5 km and the cloud top at 1 km.

The evaluation of aerosol and cloud properties has been performed over ocean and results are displayed in Fig. 7. The ACAOT (Fig. 7a) reaches high values up to 0.74 at 865 nm. As expected, aerosols are found to belong to the fine mode with effective radius, from $0.10\,\mu m$ close to the coast, to $0.16\,\mu m$ as the plume shifts to the open sea. The Ångström exponent (Fig. 7b), which depends not only on the aerosol

size but also slightly on the refractive index, is around 1.94. Figure 7c shows the low values obtained for the SSA expressing the strong absorbing capability of these aerosols. The lowest SSA values are about 0.73 at 865 nm near the coast. These aerosols are associated with a complex part of the refractive index around 0.042. The average SSA of the scenario is 0.875 and 0.840 at 550 and 865 nm, respectively, which is consistent with previous African savannah biomass burning retrieval from AERONET (Dubovik et al., 2002; Sayer et al., 2014) and remote and in situ measurements from the SAFARI 2000 campaign (Leahy et al., 2007; Johnson et al., 2008).

The retrieved ACCOT and the difference with MODIS observations are shown in Fig. 7d and 7e. The pattern followed by the ACCOT is close to the one given by MODIS. However, the comparison between the two methods reveals systematic biases when absorbing aerosols are above clouds. According to previous studies (Haywood et al., 2004; Wilcox et al., 2009; Coddington et al., 2010; Meyer et al., 2013; Jethva et al., 2013), the estimation of the COT that takes into account the aerosol absorption gives higher values than the MODIS MYD06 cloud product. Because aerosols absorb at the wavelengths traditionally used to retrieve the COT, the cloud appears darker, leading to an underestimation of its optical thickness. The impact of the aerosol absorption on the signal gets bigger as the COT increases. Where the clouds are the thickest and the absorption ACAOT the largest (i.e., a small area around 10° S, 8° E), the bias is around 15. On average over the whole scenario, ACCOT is larger than the MODIS value by 1.2.

Finally, the DRE was estimated and is reported in Fig. 7f. As expected for highly absorbing aerosols, the warming effect reaches high level with DRE values up to 195.0 W m⁻². As suggested by the approximation given by Lenoble et al. (1982; Eq. 1), such large values are obtained for an important amount of absorbing aerosols collocated with a very bright cloud (i.e., high COT value). However, 77 % of the pixels have a DRE lower than 60 W m⁻². In contrast, the radiative impact is found to be very weak, even slightly

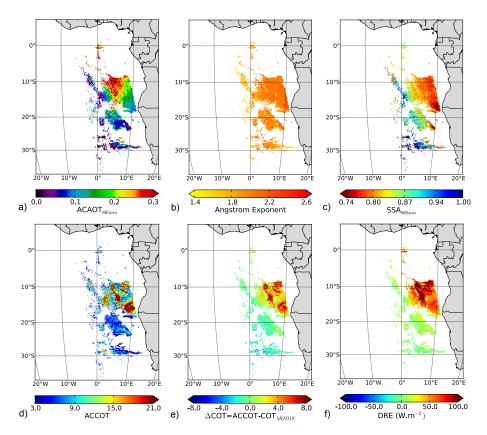


Figure 7. Biomass burning aerosols above clouds off the southwest coast of Africa on 4 August 2008. The panel displays the above-cloud AOT at 865 nm (a), the Ångström exponent (b), the aerosol SSA at 865 nm (c), the aerosol-corrected COT at 550 nm (d), the difference \triangle COT of the ACCOT and the MODIS COT (e) and the DRE of aerosols above clouds in W m⁻² (f).

negative, on the south of the study area, where the clouds are the thinnest and the aerosols less absorbing and in small amount. On average over the region, the instantaneous radiative forcing is evaluated at $36.5\,\mathrm{W\,m^{-2}}$.

4.1.2 Siberian biomass burning aerosols

High northern latitudes are also subject to forest fires from June to October. They are mostly of natural origin given favorable climatic conditions (Stocks et al., 2001), and Siberia is one of the most affected areas by boreal fires (Zhang et al., 2003), leading to significant production of smoke. These aerosols can be transported over long distances (Jaffe et al., 2004) and may result in a non-negligible radiative impact (Lee et al., 2005; Péré et al., 2014). Wildfires occurred in the eastern part of Siberia in July 2008 (Paris et al., 2009). On 3 July, aerosols were detected above clouds (Fig. 6b), over the Sea of Okhotsk. Backward trajectories have shown that they came from inland Russia, and the MODIS fire product (Giglio et al., 2003) suggests that they may be attributable to fires that took place on the east coast of Russia. According to CALIOP, the cloud top is at around 1 km and the aerosol layer is located at about 2 km in the north of the study area (55° N) and goes up to 4 km as we move southward (45° N) .

The results of the algorithm are reported in Fig. 8. Like for the previous case, the conditions reveals an important amount of particles transported above clouds with an average ACAOT (Fig. 8a) of 0.31 and a peak at 3.0 south of the Kamchatka Peninsula (50° N). On the northwest side of the peninsula, aerosol radii are found to be between 0.10 and 0.12 µm and, on the other side, the retrieved radii are a bit larger (between 0.12 and 0.16 µm). In parallel, slightly larger values of the Ångström exponent (Fig. 8b) are found in the northern part of the study area (mean value of 2.19) than in the southern part (mean value of 2.02). Despite the fact that aerosols have the same size as for the African event. the Ångström exponent reached higher values for the boreal emission. This is explained by the difference in aerosol absorption properties. The evaluated SSA (shown in Fig. 8c) appears to be closer to 1.0 with a mean value of 0.959 against 0.840 for the previous case study. It points out the scattering nature of the boreal biomass burning aerosols compared to those of the African savannah, in accordance with the study of Dubovik et al. (2002). Moreover, one can also note the variability of the aerosol absorption of this event: the northern part is associated not only to smallest particles, but also to more absorbing particles with a SSA value of 0.943 (i.e., a mean complex refractive index of 0.008) compared to 0.964

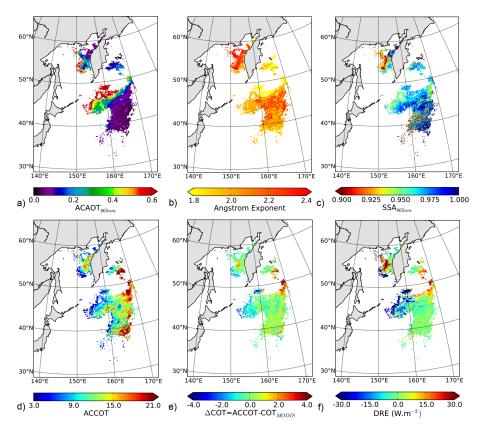


Figure 8. Same as Fig. 7 for biomass burning aerosols from Siberia on 3 July 2008.

(respectively 0.005) in the south. This difference may come from aerosol aging: back trajectories suggest that air masses left inland Russia 3 days before arriving in the southern area while it took only 1 day to arrive in the northern part of the plume.

Like for the African biomass burning event, the ACCOT (Fig. 8d) is found to be in good spatial agreement with the MODIS product. Additionally, given the weak absorbing character of the overlying aerosol layer, the biases between the two methods (Fig. 8e) are minimal. The thickest clouds are associated with the largest MODIS underestimation (biases up to +12.0). Moreover, one can also note the MODIS overestimation of the COT for thin clouds (biases up to -10.7).

The evaluation of the DRE obtained for this event is presented in Fig. 8f. Large DRE values are observed in the northern part of the study area with values around $45\,\mathrm{W\,m^{-2}}$ between 54 and 57° N. Conversely, the southwestern part (longitudes west of $160^{\circ}\,\mathrm{E}$) is associated with large negative DRE of about $-50\,\mathrm{W\,m^{-2}}$. As shown in Eq. (1), the sign of the perturbation depends on the balance between the upscattering and the absorption of the aerosol layer. A warming effect is expected where aerosols are absorbing and the clouds are bright enough. Conversely, if the cloud is not optically thick (i.e., COT < 10) and the aerosols are scattering

(SSA close to 1), the particle layer enhances the albedo, leading to local cooling. However, these large warming and cooling effects are spatially limited and 88 % of the study area have a DRE ranging from -30 to $+30\,\mathrm{W\,m^{-2}}$. On average, the radiative impact is almost neutral with a mean DRE of about $-3.5\,\mathrm{W\,m^{-2}}$.

4.1.3 Saharan dust

The last case study is related to Saharan dust lifting, transported westward over the Atlantic Ocean. This kind of scenario is usually associated with high AOT values. The event of 4 August 2008 off the coast of Morocco and Mauritania is not unique. In Fig. 9, we report results for the two POLDER orbits (Fig. 6c). The western part, which is located in the core of a dust plume, has an average ACAOT (Fig. 9a) of 0.59 at 865 nm. The CALIOP profile gives a cloud top altitude around 2 km and a dust layer at about 4 km. Dust detected off the west coast of Morocco corresponds to a less intense event with a mean ACAOT of 0.27. It has to be remembered that we only retrieve the absorption of dust in the visible spectrum (490 nm). Therefore we consider one model of aerosol absorption at 865 nm (i.e., complex part of the refractive index fixed at 0.007), which corresponds to an SSA of 0.984 for this wavelength. Thus, the Ångström exponent calculated (Fig. 9b) is constant over the study area and is

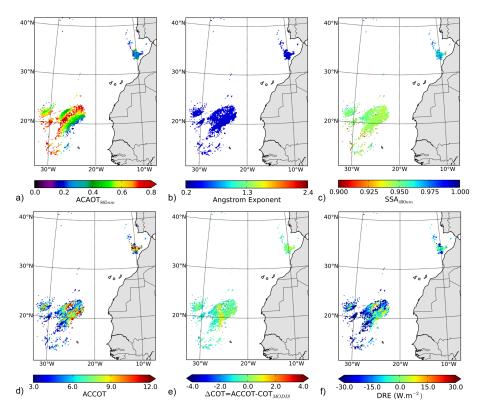


Figure 9. Same as Fig. 7 for Saharan dust above clouds on 4 August 2008, except Fig. 9c that displays the aerosol SSA at 490 nm.

equal to 0.36. Regarding absorption (Fig. 9c), the two events are again quite distinct. On the one hand, the northern area is associated with SSA at 490 nm around 0.965 with a complex part of the refractive index of 0.001. On the other hand, the western part is slightly more absorbing with a mean SSA of 0.947 and a complex part of the refractive index around 0.002. These values are consistent with those reported by Dubovik et al. (2002).

Here again, the MODIS evaluation of the COT and our estimation (Fig. 9d) are close. Moreover, the fact that dust does not strongly absorb at 865 nm (i.e., the wavelength used for the MODIS retrieval of the COT) explains the small discrepancies observed between the two methods (Fig. 9e) (Haywood et al., 2004). However, MODIS overestimates the COT for more than 60 % of the study area with biases up to -5.3. As for the previous case, this is attributable to the conjunction of thin clouds and scattering aerosols. On average, the bias is equal to -0.2.

Finally, the DRE of the study area was processed (Fig. 9f). In contrast with the previous cases, the presence of an above-cloud aerosol layer results mostly in a cooling effect, with a negative DRE over 92 % of the study area and an average value of $-18.5~\rm W~m^{-2}$. The maximum and minimum values of the radiative impact (respectively 41.3 and $-91.9~\rm W~m^{-2}$) are reached in the western area. One can also notice the correlation between retrieved ACCOT and the DRE. Since the aerosol properties do not show a lot of variability there, it

clearly illustrates the influence of the cloud albedo on the calculation of the radiative impact. Thus, the correct estimation of the COT has to be considered in order to accurately evaluate the radiative impact of ACA.

4.2 Monthly DRE results over the southeast Atlantic Ocean

The southeast Atlantic Ocean is a preferred area to study aerosol interactions with clouds and radiation because of the aerosol transport above clouds during the August–September dry season. The impact of these biomass burning particles in cloudy conditions are expected to be important not only locally, but also at a wider scale through global teleconnections (Jones et al., 2009; Jones and Haywood, 2012). However, the radiative impact of aerosols for the southwest coast of Africa remains uncertain for global aerosol models, starting with their direct effect (Myhre et al., 2013a).

The aerosol and cloud properties have been evaluated over the southeast Atlantic Ocean during the fire season in August 2006. Important events of biomass burning aerosols over clouds were detected, especially between 10 and 24 August. The largest events (i.e., with an ACAOT larger than 0.2) represent 28.9 % of the observations. They are characterized by strongly absorbing aerosols with an SSA of 0.867 at 865 nm. Then, the instantaneous radiative forcing of aerosols above clouds has been computed. The monthly averaged

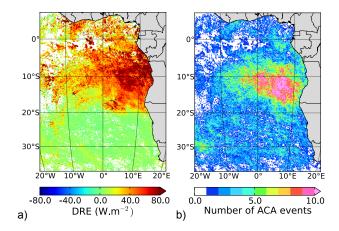


Figure 10. DRE of aerosols above clouds averaged during August 2006 (a) and number of associated events (b). The DRE has been processed over area with a cloud fraction (CF) equal to 1 and COT > 3.

DRE values and the corresponding number of observations are reported in Fig. 10a and b, respectively. Each pixel corresponds to three POLDER observations in the mean, with a maximum at 13 observed events off the Angolan coast. As for the case study in August 2008 (Fig. 7), almost all ACA events lead to a warming effect. The maximum values are observed near the coast close to 8° S latitude with averaged DRE around 125 W m⁻², which is consistent with the study of De Graaf et al. (2012).

Figure 11 displays the distribution of the DRE values reached during the month. First, it can be noticed that about 14 % of the events have a DRE between 0.0 and $2.5 \,\mathrm{W}\,\mathrm{m}^{-2}$. It is important to remember that our method is highly sensitive to the scattering process thanks to polarization measurements. Thus, we are able to detect well conditions with low AOT values or with weak absorption. Combined with thick clouds, these events lead to slightly positive DRE values. In contrast, large warming effects have been observed, with DRE values greater than 75 W m⁻² over 12.7 % of the observations. Less than 0.2% of the pixels are even associated with DRE values larger than 220 W m⁻². These dramatic values have been obtained for high loadings of absorbing aerosols (i.e., AOT values larger than 0.3 and SSA values lower than 0.85 at 865 nm) located between 9 and 17 August. However, the estimation of the DRE for those intense events has to be considered with caution since our estimation of the aerosol properties may be less accurate. During the first part of the retrieval, we consider that the aerosol absorption does not impact the polarized signal (Fig. 2). This assumption becomes questionable when the amount of aerosols above clouds is very large. On the other hand, around 5% of the events have a negative DRE with a minimum at $-41.6 \,\mathrm{W}\,\mathrm{m}^{-2}$. The average DRE for August 2006 is $33.5 \,\mathrm{W}\,\mathrm{m}^{-2}$, which is of the same order of magnitude as the value obtained by De Graaf et al. (2012) with SCIAMACHY

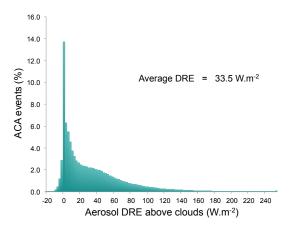


Figure 11. Frequency distribution of the aerosol DRE above clouds for August 2006 for the southeast Atlantic Ocean. Only events with $COT \ge 3$ and CF = 1 are considered.

measurements (i.e., $23 \, \mathrm{W} \, \mathrm{m}^{-2}$). However, it has to be noted that the two satellite instruments do not observe the area at the same time. Changes in conditions between the two measurements (Min and Zhang, 2014) and the difference of solar zenith angles can explain the remaining discrepancies. Furthermore, our algorithm is limited to optically thick cloud (COT > 3) and cannot be applied to fractional cloud coverage.

5 Cloud heterogeneity effects

Our method assumes that clouds are horizontally and vertically homogeneous owing to the use of plane-parallel radiative transfer algorithm (i.e., 1-D code). However, numerous studies have shown that the horizontal heterogeneity of clouds affects the scattered radiation measurements through three-dimensional radiative transfer effects (e.g., Marshak and Davis, 2005; Cornet et al., 2013; Zhang et al., 2012). The cloud heterogeneity may thus affect our estimation of aerosol and cloud properties as well as the DRE. To process the signal considering a more realistic cloud field, a 3-D radiative transfer code was used.

5.1 3-D modeling

In order to evaluate the impacts of cloud heterogeneities, the signal (i.e., radiances, polarized radiances and fluxes) for one pixel of an ACA event has been modeled with the Monte Carlo radiative transfer code 3DMCPOL (three-dimensional polarized Monte Carlo atmospheric radiative transfer model; Cornet et al., 2010). The cloud field has been generated using the algorithm 3DCLOUD (Szczap et al., 2014) and the heterogeneity controlled through the inhomogeneity parameter $\rho = \sigma(\text{COT})$ / COT, where $\sigma(\text{COT})$ is the standard deviation of the COT within the pixel. It has to be noted that our algorithm includes a filter for cloud heterogeneity that

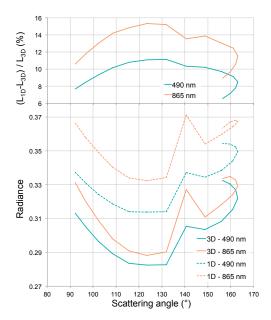


Figure 12. Simulated radiances for aerosols above a heterogeneous cloud (σ (COT) / COT = 0.6) at 490 nm (green lines) and 865 nm (orange lines) for a solar zenith angle of 40°. 3-D signals (continuous lines) have been obtained from the 3DMCPOL code and are based on a cloud field modeled with 3DCLOUD.

rejects pixels with $\sigma(COT)$ larger than 7.0. To process the cloud field, the inhomogeneity parameter ρ has been fixed at 0.6, which represents a standard value for stratocumulus clouds (Szczap et al., 2000a, b). A statistical analysis of the inhomogeneity parameter has been performed over the ACA events sampled by the algorithm. It shows that $\rho = 0.6$ can be considered has a high value in this study. The mean COT has been set to 10.0 and the cloud droplet size distribution is assumed to follow a lognormal distribution with $r_{\rm eff} = 11.0 \, \mu \text{m}$ and $v_{\rm eff} = 0.02$. The overlying aerosol layer is composed of fine-mode particles with an effective radius of 0.12 µm, an ACAOT of 0.142 at 865 nm and an SSA of 0.781 (i.e., k = 0.035). The radiative transfer (RT) simulations have been made for a solar incidence angle of 40° at the three wavelengths used for the retrievals and for a usual POLDER angular configuration.

5.2 Effects on aerosol and cloud retrieved properties

The estimation of cloud and aerosol properties using our algorithm was obtained from the 3-D modeled signal. As the horizontal heterogeneity of the cloud field only weakly influences the polarized signal, which is mostly sensitive to the first orders of scattering, the value of the scattering AOT and the aerosol model retrieved during the first part of the method are not affected.

On the contrary, the total radiances are strongly impacted by the cloud heterogeneity. The total radiances modeled with 3DMCPOL are shown in Fig. 12 in addition to those modeled with the 1-D configuration with the mean cloud properties of the 3-D fields. On average, the plane-parallel cloud (i.e., 1-D) produces 9.2 % at 490 nm and 12.6 % at 865 nm more signal than the heterogeneous cloud field. To a lesser extent, the angular behavior is also affected by a more pronounced curve from the 3-D modeled signal than from the 1-D one. The overestimation due to the 1-D assumption influences both wavelengths and consequently the radiance ratio L_{490}/L_{865} is less modified than the total signal. It is 94.1 % for the homogeneous cloud and 97.0 % for the heterogeneous one. The aerosol SSA, which is principally sensitive to the radiance ratio, is thus not too impacted by the 3-D effects contrary to the retrieved value of the ACCOT. Using a 1-D assumption, the aerosol absorption is slightly underestimated with an SSA of 0.794 (k = 0.0325) instead of 0.781 at 865 nm. Therefore, the retrieved AOT is also a little smaller than the expected one (i.e., 0.140 instead of 0.142 at 865 nm). In parallel, our method evaluates the COT at 7.6, which corresponds to an underestimation of 24 % compared to the mean value (i.e.,

5.3 Effect on the DRE

In the same way that 3-D effects influence radiances, fluxes are expected to vary with the heterogeneity of clouds. The quantification of the aerosol DRE for realistic heterogeneous cloud conditions would need 3-D radiative transfer modeling of the fluxes, which is too time consuming. To evaluate the error in the DRE due to the homogeneous cloud assumption, we compare the differences between, on the one hand, the 3-D TOA fluxes with and without aerosols for the case described in the previous section and, on the other hand, 1-D TOA fluxes with the 1-D equivalent aerosol and cloud properties (i.e., COT = 7.6; $AOT_{865nm} = 0.140$; k = 0.0325). For computing time reasons, the analysis focuses on fluxes processed at 490 nm. The results obtained from both modelings are shown in Table 2. The fluxes computed with the 1-D assumption, which corresponds to the one obtained with our method, is close to the ones given by the 3-D modeling (underestimation lower than 2.5%). We also note that the difference between 3-D and 1-D modeling is smaller for the polluted cloud scenario than for the clean cloud, which means that the aerosols tend to smooth the under-cloud heterogeneity. The exact $DRE_{0.490\mu m}$ (i.e., computed with the 3-D modeling) is equal to $92.06 \,\mathrm{W}\,\mathrm{m}^{-2}\,\mu\mathrm{m}^{-1}$, while we obtained $81.92 \,\mathrm{W} \,\mathrm{m}^{-2} \,\mathrm{\mu m}^{-1}$ with the 1-D assumption. Therefore, considering a plane-parallel cloud for both retrieval and DRE processing leads to a slight underestimation of the radiative impact of aerosols, in the case of cloud heterogeneity. For the events presented in this paper (i.e., which meet our selection criteria), the obtained values can be seen as a lower bound for the ACA DRE. Finally, let us mention that this error is expected to be smaller at higher wavelengths and consequently for the solar DRE since the effect of aerosol absorption is the largest in the UV.

Table 2. Fluxes for polluted and clean conditions and DRE (W m $^{-2}$ µm $^{-1}$) at the TOA at 0.490 µm modeled using 3-D and 1-D assumptions.

6 Conclusion

In this study, we introduced a new approach for the retrieval of aerosol and cloud properties (i.e., AOT, SSA and COT) when an aerosol layer lies above a liquid cloud over the ocean. Its range of application is restricted to homogeneous clouds with COT values larger than 3. The strong point of the algorithm is to combine the sensitivity provided by both total and polarized measurements from the passive satellite instrument POLDER. In the first step, the information on the scattering state of the aerosol layer is given by polarized radiances. The presence of an aerosol layer above a thick liquid cloud leads to a significant enhancement of the polarization at the side scattering angle that is used to retrieve the scattering AOT and the aerosol size. Then, these properties together with total radiances are used to determine simultaneously the absorption of the aerosol layer and the COT. In that way, this method allows the retrieving of the aerosol layer properties with minimal assumptions and the cloud properties corrected from the aerosol absorption.

Nevertheless, the impact of the approximations and the assumptions of the method have been assessed. The largest uncertainty about the SSA is due to the approximation about the weak sensitivity of polarized radiances to absorption. When the aerosol size distribution is dominated by the fine mode, an underestimation of -0.055 can be expected for an extreme event of absorbing aerosols above clouds (i.e., $AOT_{865\mathrm{nm}} = 0.6$ and $SSA_{865\mathrm{nm}} = 0.77$). Otherwise, the bias of the SSA is below 0.03. It has to be pointed out that the underestimation of the SSA always goes together with an underestimation of the scattering AOT. As a consequence, the algorithm presented here provides a reliable estimation of the absorption AOT, which is among the most important parameters for evaluating the DRE of aerosols above clouds.

The algorithm has shown its ability to retrieved aerosol and cloud properties for three case studies with very different characteristics. The first one is related to a biomass burning event off the southwest coast of Africa, which is an area frequently used for ACA studies. As expected, these aerosols are found to be strongly absorbing with an SSA value of 0.84 at 865 nm. Moreover, the COT given by MODIS is largely underestimated over the study area, which highlights the importance of taking into account the absorption of aerosol for the COT retrieval. The second example is devoted to Siberian biomass burning. It illustrates the high variability of ACA

properties with an average particle SSA of 0.96. In contrast with the previous event, the enhancement of scattering due to these aerosols may cause an overestimation of the COT by MODIS. Finally, the algorithm can be used not only on fine-mode aerosols above clouds, but also on dust particles. The study of Saharan dust transported over clouds has revealed the ability of the method to evaluate the differential dust absorption of visible light at a short wavelength for a given value at 865 nm. It should be added that low differences have been observed between our COT retrieval and the MODIS one where AOT is the smallest. Such biases have already been observed by Zeng et al. (2012) and are primarily due to the differences of instrument characteristics.

Furthermore, we developed a procedure to evaluate the DRE of aerosols above clouds based on exact calculations. The radiative impact processed for the three case studies confirms the need of accurately quantifying the aerosol absorption and the brightness of underneath the cloud. Thick clouds in association with highly absorbing aerosols translate into a warming effect and can reach high DRE values as for the African biomass burning aerosols. Conversely, a cooling effect can be observed under low aerosol absorption and thin cloud conditions as for the Saharan dust event. The estimated DRE for Siberian biomass burning aerosols is spatially contrasted since both cloud and aerosol properties show variability.

The algorithm has been applied to 1 month of measurements over the southeast Atlantic Ocean. August 2006 is characterized by an important amount of absorbing biomass burning aerosols above the permanent stratocumulus deck. The DRE has been processed. The presence of the aerosol layer above bright clouds is responsible for a large radiative impact. The monthly averaged value over the study area is estimated at $33.5 \,\mathrm{W} \,\mathrm{m}^{-2}$, which is of the same order of magnitude as the estimation of De Graaf et al. (2012; i.e., $23 \,\mathrm{W}\,\mathrm{m}^{-2}$). Let us point out that differences between the results of this study and the literature are expected and are mainly due to the selection of the ACA events: this analysis does not include thin clouds (i.e., COT < 3) and fractional cloud coverage conditions which leads to biased high the DRE. The algorithm developed here could provide aerosol and cloud properties that can be used to better constrain numerical models, leading to a reduction of their uncertainty.

Some efforts still have to be made to enhance our knowledge of aerosols above clouds. Currently, the described

method allows the retrieval of aerosol and cloud properties only over the ocean. The procedure has to be extended to ACA events over land, which requires paying attention to the contribution of the surface to the measurements. Another key point is the study of aerosols over thin layers of clouds. The first part of the algorithm relies on the independence of the polarized signal for optically thick clouds. To advance further, scenarii with aerosols in fractional cloud coverage have to be investigated. The cloud inhomogeneity also affects the radiances and fluxes of ACA areas. Thus, we have examined the impact of considering a plane-parallel cloud on the aerosol and cloud properties as well as the DRE. On the one hand, the retrieval of aerosol properties is weakly biased since polarized radiances and radiance ratio are not significantly affected by cloud heterogeneity. Finally, the homogeneous cloud assumption leads to an underestimation of the DRE of aerosols. This bias remains small in this study because cases with too heterogeneous clouds are rejected. However, a thorough analysis of the effect of the homogeneous cloud assumption on the estimation of the DRE would provide a significant contribution to the scientific field.

The first results obtained for ACA over the ocean are promising and confirm the need for both global and temporal distribution aerosol and cloud properties. Thus, our next target will be to analyze POLDER measurements over the whole database and to give a first estimation of the global DRE of aerosols over cloudy skies.

Acknowledgements. This work was supported by the Programme National de Télédétection Spatiale (PNTS, http://www.insu.cnrs.fr/pnts), grant nos. PNTS-2013-10 and PNTS-2014-02. The authors are grateful to CNES, NASA and the ICARE data and services center.

The authors acknowledge the support of France Grilles for providing the computing resources of the French National Grid Infrastructure.

The authors would like to thank the reviewers for their valuable comments and suggestions that considerably improved the article. Finally, they are grateful to the editor, Paola Formenti, for her help during the editorial process.

Edited by: P. Formenti

References

- 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, 288, 1042–1047, 2000.
- Albrecht, B. A.: Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness, Science, 245, 1227–1230, 1989.
- 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, doi:10.5194/acp-7-81-2007, 2007.

- Bréon, F. M., Tanré, D., and Generoso, S.: Aerosol effect on cloud droplet size monitored from satellite, Science, 295, 834–838, 2002.
- 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.-Atmos., 113, D13206, doi: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, 2009.
- Coddington, O. M., Pilewskie, P., Redemann, J., Platnick, S., Russell, P. B., Schmidt, K. S., and Vukicevic, T.: Examining the impact of overlying aerosols on the retrieval of cloud optical properties from passive remote sensing, J. Geophys. Res.-Atmos., 115, D10211, doi:10.1029/2009JD012829, 2010.
- Cole, A. E., Court, A., and Kantor, A. J.: Model atmospheres, in: Handbook of geophysics and space environment, Chap. 2, edited by: Valley, S. L., McGraw-Hill, New York, 1965.
- Cornet, C., Labonnote, L. C., and Szczap, F.: Three-dimensional polarized Monte Carlo atmospheric radiative transfer model (3DM-CPOL): 3D effects on polarized visible reflectances of a cirrus cloud, J. Quant. Spectrosc. Ra., 111, 174–186, 2010.
- Cornet, C., Szczap, F., Labonnote, L. C., Fauchez, T., Parol, F., Thieuleux, F., Riedi, J., Dubuisson, P., and Ferlay, N.: Evaluation of cloud heterogeneity effects on total and polarized visible radiances as measured by POLDER/PARASOL and consequences for retrieved cloud properties, in: Radiation processes in the atmosphere and ocean (IRS2012): Proceedings of the International Radiation Symposium (IRC/IAMAS), Vol. 1531, No. 1, 99–102, AIP Publishing, 2013.
- Costantino, L. and Bréon, F.-M.: Satellite-based estimate of aerosol direct radiative effect over the South-East Atlantic, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 13, 23295–23324, doi:10.5194/acpd-13-23295-2013, 2013.
- Cox, C. and Munk, W.: Measurement of the roughness of the sea surface from photographs of the sun's glitter, JOSA, 44, 838– 850, 1954.
- De Graaf, M., Tilstra, L. G., Wang, P., and Stammes, P.: Retrieval of the aerosol direct radiative effect over clouds from space-borne spectrometry, J. Geophys. Res.-Atmos., 117, D07207, doi:10.1029/2011JD017160, 2012.
- De Haan, J. F., Bosma, P. B., and Hovenier, J. W.: The adding method for multiple scattering calculations of polarized light, Astron. Astrophys., 183, 371–391, 1987.
- 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, 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, doi:10.1175/1520-0469(2002)059<0590:VOAAOP>2.0.CO;2, 2002.
- Dubuisson, P., Roger, J.-C., Mallet, M., and Dubovik, O.: a code to compute the direct solar radiative forcing: application to anthropogenic aerosols during the Escompte experiment, Proceedings of IRS 2004: Current Problems in Atmospheric Radiation, 23– 28 August 2004, Busan, Korea, 2004.

- Fougnie, B., Bracco, G., Lafrance, B., Ruffel, C., Hagolle, O., and Tinel, C.: PARASOL in-flight calibration and performance, Appl. Optics, 46, 5435–5451, 2007.
- Giglio, L., Descloitres, J., Justice, C. O., Kaufman, Y. J.: An enhanced contextual fire detection algorithm for MODIS, Remote Sens. Environ., 87, 273–282, 2003.
- 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, doi: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. Meteorol. Soc., 130, 779–800, 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, D10S02, doi:10.1029/2004JD004798, 2005.
- 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, 2007.
- Jaffe, D., Bertschi, I., Jaeglé, L., Novelli, P., Reid, J. S., Tanimoto, H., Vingarzan, R., and Westphal, D. L.: Long-range transport of Siberian biomass burning emissions and impact on surface ozone in western North America, Geophys. Res. Lett., 31, L16106, doi:10.1029/2004GL020093, 2004.
- 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 Sens., 51, 3862–3870, 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, doi: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. Meteorol. Soc., 130, 1407–1422, 2004.
- Johnson, B. T., Osborne, S. R., Haywood, J. M., and Harrison, M. A. J.: Aircraft measurements of biomass burning aerosol over West Africa during DABEX, J. Geophys. Res.-Atmos., 113, D00C06, doi:10.1029/2007JD009451, 2008.
- Jones, A. and Haywood, J. M.: Sea-spray geoengineering in the HadGEM2-ES earth-system model: radiative impact and climate response, Atmos. Chem. Phys., 12, 10887–10898, doi:10.5194/acp-12-10887-2012, 2012.
- Jones, A., Haywood, J., and Boucher, O.: Climate impacts of geoengineering marine stratocumulus clouds, J. Geophys. Res.-Atmos., 114, D10106, doi:10.1029/2008JD011450, 2009.
- Kaufman, Y. J., Koren, I., Remer, L. A., Rosenfeld, D., and Rudich, Y.: The effect of smoke, dust, and pollution aerosol on shallow cloud development over the Atlantic Ocean, P. Natl. Acad. Sci. USA, 102, 11207–11212, 2005.
- Knobelspiesse, 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.

- Koren, I., Kaufman, Y. J., Remer, L. A., and Martins, J. V.: Measurement of the effect of Amazon smoke on inhibition of cloud formation, Science, 303, 1342–1345, 2004.
- Leahy, L. V., Anderson, T. L., Eck, T. F., and Bergstrom, R. W.: A synthesis of single scattering albedo of biomass burning aerosol over southern Africa during SAFARI 2000, Geophys. Res. Lett., 34, L12814, doi:10.1029/2007GL029697, 2007.
- Lee, K. H., Kim, J. E., Kim, Y. J., Kim, J., and von Hoyningen-Huene, W.: Impact of the smoke aerosol from Russian forest fires on the atmospheric environment over Korea during May 2003, Atmos. Environ., 39, 85–99, 2005.
- Lenoble, J., Tanré, D., Deschamps, P. Y., and Herman, M.: A simple method to compute the change in earth-atmosphere radiative balance due to a stratospheric aerosol layer, J. Atmos. Sci., 39, 2565–2576, 1982.
- Marshak, A. and Davis, A. (Eds.): 3D Radiative Transfer in Cloudy Atmospheres, Vol. 5117, Springer, Berlin, Heidelberg, 2005.
- 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, 2013.
- Min, M. and Zhang, Z.: On the influence of cloud fraction diurnal cycle and sub-grid cloud optical thickness variability on all-sky direct aerosol radiative forcing, J. Quant. Spectrosc. Ra., 142, 25–36, 2014.
- 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., Seland, 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, doi:10.5194/acp-13-1853-2013, 2013a.
- 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, 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: 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 and New York, NY, USA, 571–657, 2013b.
- Nakajima, T. and King, M. D.: Determination of the optical thickness and effective particle radius of clouds from reflected solar radiation measurements. Part I: Theory, J. Atmos. Sci., 47, 1878–1893, 1990.
- Paris, J.-D., Stohl, A., Nédélec, P., Arshinov, M. Yu., Panchenko, M. V., Shmargunov, V. P., Law, K. S., Belan, B. D., and Ciais, P.: Wildfire smoke in the Siberian Arctic in summer: source characterization and plume evolution from airborne measurements, Atmos. Chem. Phys., 9, 9315–9327, doi:10.5194/acp-9-9315-2009, 2009.
- Péré, J. C., Bessagnet, B., Mallet, M., Waquet, F., Chiapello, I., Minvielle, F., Pont, V., and Menut, L.: Direct radiative effect of

- the Russian wildfires and its impact on air temperature and atmospheric dynamics during August 2010, Atmos. Chem. Phys., 14, 1999–2013, doi:10.5194/acp-14-1999-2014, 2014.
- Peters, K., Quaas, J., and Bellouin, N.: Effects of absorbing aerosols in cloudy skies: a satellite study over the Atlantic Ocean, Atmos. Chem. Phys., 11, 1393–1404, doi:10.5194/acp-11-1393-2011, 2011.
- Ramanathan, V., Crutzen, P. J., Kiehl J. T., and Rosenfeld, D.: Aerosols, climate, and the hydrological cycle, Science, 294, 2119–2124, 2001.
- Rossow, W. B., Garder, L. C., and Lacis, A. A.: Global, seasonal cloud variations from satellite radiance measurements. Part I: Sensitivity of analysis, J. Climate, 2, 419–458, 1989.
- Sayer, A. M., Hsu, N. C., Eck, T. F., Smirnov, A., and Holben, B. N.: 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, 11493–11523, doi:10.5194/acp-14-11493-2014, 2014.
- Stocks, B. J., Wotton, B. M., Flannigan, M. D., Fosberg, M. A., Cahoon, D. R., and Goldammer, J. G.: Boreal forest fire regimes and climate change, Remote Sensing and Climate Modeling: Synergies and Limitations, 233–246, Springer Netherlands, 2001.
- Szczap, F., Isaka, H., Saute, M., Guillemet, B., and Gour, Y.: Inhomogeneity effects of 1D and 2D bounded cascade model clouds on their effective radiative properties, Phys. Chem. Earth Pt B, 25, 83–89, 2000a.
- Szczap, F., Isaka, H., Saute, M., Guillemet, B., and Ioltukhovski, A.: Effective radiative properties of bounded cascade nonabsorbing clouds: Definition of the equivalent homogeneous cloud approximation, J. Geophys. Res.-Atmos., 105, 20617–20633, 2000b.
- Szczap, F., Gour, Y., Fauchez, T., Cornet, C., Faure, T., Jourdan, O., Penide, G., and Dubuisson, P.: A flexible three-dimensional stratocumulus, cumulus and cirrus cloud generator (3DCLOUD) based on drastically simplified atmospheric equations and the Fourier transform framework, Geosci. Model Dev., 7, 1779–1801, doi:10.5194/gmd-7-1779-2014, 2014.
- 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.
- 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, doi:10.1175/JAS-D-11-0130.1, 2012.
- Twomey, S.: Pollution and the planetary albedo, Atmos. Environ., 8, 1251–1256, 1974.
- Twomey, S.: The influence of pollution on the shortwave albedo of clouds, J. Atmos. Sci., 34, 1149–1152, 1977.

- Vanbauce, C., Cadet, B., and Marchand, R. T.: Comparison of POLDER apparent and corrected oxygen pressure to ARM/MMCR cloud boundary pressures, Geophys. Res. Lett., 30, 1212, doi:10.1029/2002GL016449, 2003.
- Waquet, F., Riedi, J., Labonnote, 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, doi:10.1175/2009JAS3026.1, 2009.
- 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 Vanbauce, 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., 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, 2013b.
- Wilcox, E. M. and Platnick, S.: Estimate of the impact of absorbing aerosol over cloud on the MODIS retrievals of cloud optical thickness and effective radius using two independent retrievals of liquid water path, J. Geophys. Res.-Atmos., 114, D05210, doi:10.1029/2008JD010589, 2009.
- Winker, D. M., Vaughan, M. A., Omar, A., Hu, Y., Powell, K. A., Liu, Z., Hunt., W., and Young, S. A.: Overview of the CALIPSO mission and CALIOP data processing algorithms, J. Atmos. Ocean. Technol., 26, 2310–2323, doi:10.1175/2009JTECHA1281.1, 2009.
- Winker, D. M., Tackett, J. L., Getzewich, B. J., Liu, Z., Vaughan, M. A., and Rogers, R. R.: The global 3-D distribution of tropospheric aerosols as characterized by CALIOP, Atmos. Chem. Phys., 13, 3345–3361, doi:10.5194/acp-13-3345-2013, 2013.
- 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. Technol., 26, 1105–1119, doi:10.1175/2008JTECHA1221.1, 2009.
- Zeng, S., Cornet, C., Parol, F., Riedi, J., and Thieuleux, F.: A better understanding of cloud optical thickness derived from the passive sensors MODIS/AQUA and POLDER/PARASOL in the A-Train constellation, Atmos. Chem. Phys., 12, 11245–11259, doi:10.5194/acp-12-11245-2012, 2012.
- 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, 2003.
- Zhang, Z., Ackerman, A. S., Feingold, G., Platnick, S., Pincus, R., and Xue, H.: Effects of cloud horizontal inhomogeneity and drizzle on remote sensing of cloud droplet effective radius: Case studies based on large-eddy simulations, J. Geophys. Res.-Atmos., 117, D19208, doi:10.1029/2012JD017655, 2012.

- Ackerman, A. S., O. B. Toon, D. E. Stevens, A. J. Heymsfield, V. Ramanathan et E. J. Welton (2000). "Reduction of tropical cloudiness by soot". In: *Science* 288.5468, p. 1042–1047.
- Albrecht, B. A. (1989). "Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness". In: *Science* 245.4923, p. 1227–1230.
- Atwater, M. A. (1970). "Planetary albedo changes due to aerosols". In: *Science* 170.3953, p. 64–66.
- Balkanski, Y., M. Schulz, T. Claquin et S. Guibert (2007). "Reevaluation of Mineral aerosol radiative forcings suggests a better agreement with satellite and AERONET data". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 7.1, p. 81–95.
- Baran, A. et L.-C. Labonnote (2007). "A self-consistent scattering model for cirrus. I: The solar region". In: Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society 133.629, p. 1899–1912.
- Bellouin, N., O. Boucher, J. Haywood et M. S. Reddy (2005). "Global estimate of aerosol direct radiative forcing from satellite measurements". In: *Nature* 438.7071, p. 1138–1141.
- Bellouin, N., G. W. Mann, M. T. Woodhouse, C. Johnson, K. S. Carslaw et M. Dalvi (2013). "Impact of the modal aerosol scheme GLOMAP-mode on aerosol forcing in the Hadley Centre Global Environmental Model". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 13.6, p. 3027–3044.
- Bellouin, N., J. Rae, A. Jones, C. Johnson, J. Haywood et O. Boucher (2011). "Aerosol forcing in the Climate Model Intercomparison Project (CMIP5) simulations by HadGEM2-ES and the role of ammonium nitrate". In: *Journal of Geophysical Research:* Atmospheres (1984–2012) 116.D20.
- Bermudo, F., B. Fougnie et T. Bret Dibat (2004). "POLDER 2 in-flight results and PARASOL perspectives". In: 5th International Conference on Space Optics. T. 554, p. 129–135.
- 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.
- Bond, T. C., S. J. Doherty, D. W. Fahey, P. M. Forster, T. Berntsen, B. DeAngelo, M. Flanner, S. Ghan, B. Kärcher, D. Koch, S. Kinne, Y. Kondo, P. K. Quinn, M. C. Sarofim, M. G. Schultz, M. Schulz, C. Venkataraman, H. Zhang, S. Zhang, N.

Bellouin, S. K. Guttikunda, P. K. Hopke, M. Z. Jacobson, J. W. Kaiser, Z. Klimont, U. Lohman, J. P. Schwarz, D. Shindell, Storelymo, S. G. Warren et C. S. Zender (2013). "Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 118.11, p. 5380–5552.

- Boucher, O., D. Randall, P. Artaxo, C. Bretherton, G. Feingold, P. Forster, V.-M. Kerminen, Y. Kondo, H. Liao, U. Lohmann, P. Rasch, S. K. Satheesh, S. Sherwood, B. Stevens et X. Y. Zhang (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. Sous la dir. de Stocker, T. F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S. K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex et P. M. Midgley. Cambridge, United Kingdom et New York, NY, USA: Cambridge University Press. Chap. 7, p. 571–658.
- Boucher, O., S. E. Schwartz, T. P. Ackerman, T. L. Anderson, B. Bergstrom, B. Bonnel, P. Chýlek, A. Dahlback, Y. Fouquart, Q. Fu, R. N. Halthore, J. M. Haywood, T. Iversen, S. Kato, S. Kinne, Kirkevåg, K. R. Knapp, A. Lacis, I. Laszlo, M. I. Mishchenko, S. Nemesure, V. Ramaswany, D. L. Roberts, P. Russell, M. E. Schlesinger, G. L. Stephens, R. Wagener, M. Wang, J. Wong et F. Yang (1998). "Intercomparison of models representing direct shortwave radiative forcing by sulfate aerosols". In: Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012) 103.D14, p. 16979–16998.
- Bréon, F.-M. et P.-Y. Deschamps (1993). "Optical and physical parameter retrieval from POLDER measurements over the ocean using an analytical model". In: Remote sensing of environment 43.2, p. 193–207.
- Bréon, F.-M. et P. Goloub (1998). "Cloud droplet effective radius from spaceborne polarization measurements". In: *Geophysical research letters* 25.11, p. 1879–1882.
- Brioude, J., O. R. Cooper, G. Feingold, M. Trainer, S. R. Freitas, D. Kowal, J. K. Ayers, E. Prins, P. Minnis, S. A. McKeen, G. J. Frost et E.-Y. Hsie (2009). "Effect of biomass burning on marine stratocumulus clouds off the California coast". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 9.22, p. 8841–8856.
- Buriez, J. C., C. Vanbauce, F. Parol, P. Goloub, M. Herman, B. Bonnel, Y. Fouquart, P. Couvert et G. Seze (1997). "Cloud detection and derivation of cloud properties from POLDER". In: *International Journal of Remote Sensing* 18.13, p. 2785–2813.
- Cahalan, R. F., W. Ridgway, W. J. Wiscombe, T. L. Bell et J. B. Snider (1994). "The albedo of fractal stratocumulus clouds". In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 51.16, p. 2434–2455.
- Carslaw, K. S., O. Boucher, D. V. Spracklen, G. W. Mann, J. G. L. Rae, S. Woodward et M. Kulmala (2010). "A review of natural aerosol interactions and feedbacks within the Earth system". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 10.4, p. 1701–1737.
- Chand, D., T. L. Anderson, R. Wood, R. J. Charlson, Y. Hu, Z. Liu et M. Vaughan (2008). "Quantifying above-cloud aerosol using spaceborne lidar for improved understanding of cloudy-sky direct climate forcing". In: *Journal of Geophysical Research:* Atmospheres (1984–2012) 113.D13.

Chand, D., R. Wood, T. Anderson, S. Satheesh et R. Charlson (2009). "Satellite-derived direct radiative effect of aerosols dependent on cloud cover". In: *Nature Geoscience* 2.3, p. 181–184.

- Chandrasekhar, S. (1950). Radiative Transfer. Oxford University Press.
- Charlson, R. J. et M. J. Pilat (1969). "Climate: the influence of aerosols". In: *Journal of Applied Meteorology* 8.6, p. 1001–1002.
- Chepfer, H., G. Brogniez, P. Goloub, F. M. Breon et P. H. Flamant (1999). "Observations of horizontally oriented ice crystals in cirrus clouds with POLDER-1/ADEOS-1". In: Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 63.2, p. 521–543.
- Chin, M., T. Diehl, O. Dubovik, T. Eck, B. Holben, A. Sinyuk et D. Streets (2009). "Light absorption by pollution, dust, and biomass burning aerosols: a global model study and evaluation with AERONET measurements". In: *Annales Geophysicae*. T. 27. 9. Copernicus GmbH, p. 3439–3464.
- Chin, M., P. Ginoux, S. Kinne, O. Torres, B. N. Holben, B. N. Duncan, R. V. Martin, J. A. Logan, A. Higurashi et T. Nakajima (2002). "Tropospheric aerosol optical thickness from the GOCART model and comparisons with satellite and Sun photometer measurements". In: *Journal of the atmospheric sciences* 59.3, p. 461–483.
- Chin, M., R. B. Rood, S.-J. Lin, J.-F. Müller et A. M. Thompson (2000). "Atmospheric sulfur cycle simulated in the global model GOCART: Model description and global properties". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)* 105.D20, p. 24671–24687.
- Chung, C. E., V. Ramanathan, D. Kim et I. A. Podgorny (2005). "Global anthropogenic aerosol direct forcing derived from satellite and ground-based observations". In: Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012) 110.D24.
- Coddington, O. M., P. Pilewskie, J. Redemann, S. Platnick, P. B. Russell, K. S. Schmidt, W. J. Gore, J. Livingston, G. Wind et T. Vukicevic (2010). "Examining the impact of overlying aerosols on the retrieval of cloud optical properties from passive remote sensing". In: Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012) 115.D10.
- Cole, A. E., A. Court et A. J. Kantor (1965). "Model atmospheres". In: Handbook of geophysics and space environment. Sous la dir. de Valley, S. L. New York, NY, USA: McGraw-Hill. Chap. 2.
- Cornet, C., L.-C. Labonnote et F. Szczap (2010). "Three-dimensional polarized Monte Carlo atmospheric radiative transfer model (3DMCPOL): 3D effects on polarized visible reflectances of a cirrus cloud". In: *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 111.1, p. 174–186.
- Cornet, C., F. Szczap, T. Fauchez, F. Parol, F. Thieuleux, J. Riedi, P. Dubuisson et N. Ferlay (2013). "Evaluation of cloud heterogeneity effects on total and polarized visible radiances as measured by POLDER/PARASOL and consequences for retrieved cloud properties". In: Radiation processes in the atmosphere and ocean (IRS2012): Proceedings of the International Radiation Symposium (IRC/IAMAS). T. 1531. 1. AIP Publishing, p. 99–102.

Coulson, K. L., V. S. Whitehead et C. Campbell (1986). "Polarized views of the Earth from orbital altitude". In: 1986 Technical Symposium Southeast. International Society for Optics et Photonics, p. 35–41.

- 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.
- Davis, A., A. Marshak, R. Cahalan et W. Wiscombe (1997). "The Landsat scale break in stratocumulus as a three-dimensional radiative transfer effect: Implications for cloud remote sensing". In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 54.2, p. 241–260.
- 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.
- De Graaf, M., L. G. Tilstra, P. Wang et P. Stammes (2012). "Retrieval of the aerosol direct radiative effect over clouds from spaceborne spectrometry". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 117.D7.
- De Haan, J. F., P. B. Bosma et J. W. Hovenier (1987). "The adding method for multiple scattering calculations of polarized light". In: Astronomy and Astrophysics 183, p. 371–391.
- Dentener, F., S. Kinne, T. Bond, O. Boucher, J. Cofala, S. Generoso, P. Ginoux, S. Gong, J. J. Hoelzemann, A. Ito, L. Marelli, J. E. Penner, J.-P. Putaud, C. Textor, M. Schulz, G. R. van der Werf et W. J (2006). "Emissions of primary aerosol and precursor gases in the years 2000 and 1750 prescribed data-sets for AeroCom". In: Atmospheric Chemistry and Physics 6.12, p. 4321–4344.
- Deschamps, P.-Y., F.-M. Bréon, M. Leroy, A. Podaire, A. Bricaud, J. C. Buriez et G. Seze (1994). "The POLDER mission: Instrument characteristics and scientific objectives". In: *Geoscience and Remote Sensing, IEEE Transactions on* 32.3, p. 598–615.
- Deschamps, P.-Y., M. Hennan, A. Podaire, M. Leroy, M. Laporte et P. Vermande (1990). "A spatial instrument for the observation of polarization and directionality of Earth reflectances: POLDER". In: Geoscience and Remote Sensing Symposium, 1990. IGARSS'90.'Remote Sensing Science for the Nineties'., 10th Annual International. IEEE, p. 1769–1774.
- Deuzé, J.-L., F.-M. Bréon, P.-Y. Deschamps, C. Devaux, M. Herman, A. Podaire et J. L. Roujean (1993). "Analysis of the POLDER (POLarization and Directionality of Earth's Reflectances) airborne instrument observations over land surfaces". In: Remote Sensing of Environment 45.2, p. 137–154.
- Deuzé, J.-L., F.-M. Bréon, C. Devaux, P. Goloub, M. Herman, B. Lafrance, F. Maignan, A. Marchand, F. Nadal, G. Perry et D. Tanré (2001). "Remote sensing of aerosols over land surfaces from POLDER-ADEOS-1 polarized measurements". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 106.D5, p. 4913–4926.
- Deuzé, J.-L., M. Herman, P. Goloub, D. Tanré et A. Marchand (1999). "Characterization of aerosols over ocean from POLDER/ADEOS-1". In: *Geophysical Research Letters* 26.10, p. 1421–1424.

Deuzé, J.-L., M. Herman et R. Santer (1989). "Fourier series expansion of the transfer equation in the atmosphere-ocean system". In: *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 41.6, p. 483–494.

- Dollfus, A. et D. L. Coffeen (1970). "Polarization of Venus I disk observations". In: *Astronomy and Astrophysics* 8, p. 251.
- Dubovik, O., B. Holben, T. F. Eck, A. Smirnov, Y. J. Kaufman, M. D. King, D. Tanré et I. Slutsker (2002). "Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations". In: *Journal of the atmospheric sciences* 59.3, p. 590–608.
- Dubovik, O., T. Lapyonok, P. Litvinov, M. Herman, D. Fuertes, F. Ducos, A. Lopatin, A. Chaikovsky, B. Torres, Y. Derimian, X. Huang, M. Aspetsberger et C. Federspiel (2014). "GRASP: a versatile algorithm for characterizing the atmosphere". In: *SPIE: Newsroom.*
- 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.
- Dubuisson, P., J. C. Roger, M. Mallet et O. Dubovik (2006). "A code to compute the direct solar radiative forcing: application to anthropogenic aerosols during the Escompte experiment". In: Proc. International Radiation Symposium (IRS 2004) on Current Problems in Atmospheric Radiation, edited by: Fischer, H., Sohn, B.-J., and Deepak, A., Hampton, p. 127–130.
- Dutton, E. G. et J. R. Christy (1992). "Solar radiative forcing at selected locations and evidence for global lower tropospheric cooling following the eruptions of El Chichón and Pinatubo". In: Geophysical Research Letters 19.23, p. 2313–2316.
- Feingold, G., H. Jiang et J. Y. Harrington (2005). "On smoke suppression of clouds in Amazonia". In: Geophysical Research Letters 32.2.
- Feng, N. et S. A. Christopher (2015). "Measurement-based estimates of direct radiative effects of absorbing aerosols above clouds". In: *Journal of Geophysical Research:* Atmospheres 120.14, p. 6908–6921.
- Fougnie, B., G. Bracco, B. Lafrance, C. Ruffel, O. Hagolle et C. Tinel (2007). "PARASOL in-flight calibration and performance". In: *Applied optics* 46.22, p. 5435–5451.
- Fu, J. S., N. C. Hsu, Y. Gao, K. Huang, C. Li, N.-H. Lin et S.-C. Tsay (2012). "Evaluating the influences of biomass burning during 2006 BASE-ASIA: a regional chemical transport modeling". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 12.9, p. 3837–3855.
- Garrett, T. J. et L. L. Verzella (2008). "Looking back: An evolving history of Arctic aerosols". In: *Bulletin of the American Meteorological Society* 89.3, p. 299–302.
- Garstang, M., P. D. Tyson, R. Swap, M. Edwards, P. Kållberg et J. A. Lindesay (1996). "Horizontal and vertical transport of air over southern Africa". In: *Journal of Geophysical Research:* Atmospheres 101.D19, p. 23721–23736.

Giglio, L., J. Descloitres, C. O. Justice et Y. J. Kaufman (2003). "An enhanced contextual fire detection algorithm for MODIS". In: Remote sensing of environment 87.2, p. 273–282.

- Ginoux, P., M. Chin, I. Tegen, J. M. Prospero, B. Holben, O. Dubovik et S.-J. Lin (2001). "Sources and distributions of dust aerosols simulated with the GOCART model". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)* 106.D17, p. 20255–20273.
- Goloub, P. (2000). "L'expérience POLDER ou la polarimétrie alternative pour la détection des particules atmosphériques". Habilitation à diriger des recherches. Lille 1
- Goloub, P., M. Herman, H. Chepfer, J. Riedi, G. Brogniez, P. Couvert et G. Seze (2000). "Cloud thermodynamical phase classification from the POLDER spaceborne instrument". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)* 105.D11, p. 14747–14759.
- 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.
- Hagolle, O., P. Goloub, P.-Y. Deschamps, H. Cosnefroy, X. Briottet, T. Bailleul, J.-M. Nicolas, F. Parol, B. Lafrance et M. Herman (1999). "Results of POLDER in-flight calibration". In: Geoscience and Remote Sensing, IEEE Transactions on 37.3, p. 1550–1566.
- Hansell, R. A., S. C. Ou, K. N. Liou, J. K. Roskovensky, S. C. Tsay, C. Hsu et Q. Ji (2007). "Simultaneous detection/separation of mineral dust and cirrus clouds using MODIS thermal infrared window data". In: Geophysical Research Letters 34.11.
- Hansen, J. E. et J. W. Hovenier (1974). "Interpretation of the polarization of Venus". In: Journal of the Atmospheric Sciences 31.4, p. 1137–1160.
- Hansen, J. E., M. Sato et R. Ruedy (1997). "Radiative forcing and climate response". In: Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012) 102.D6, p. 6831–6864.
- Hansen, J. E. et L. D. Travis (1974). "Light scattering in planetary atmospheres". In: Space Science Reviews 16.4, p. 527–610.
- Hara, K., S. Yamagata, T. Yamanouchi, K. Sato, A. Herber, Y. Iwasaka, M. Nagatani et H. Nakata (2003). "Mixing states of individual aerosol particles in spring Arctic troposphere during ASTAR 2000 campaign". In: *Journal of Geophysical Research:* Atmospheres (1984–2012) 108.D7.
- Hasekamp, O. P. (2010). "Capability of multi-viewing-angle photo-polarimetric measurements for the simultaneous retrieval of aerosol and cloud properties". In: *Atmospheric Measurement Techniques* 3.4, p. 839–851.
- Haywood, J. M., P. Francis, S. Osborne, M. Glew, N. Loeb, E. Highwood, D. Tanré, G. Myhre, P. Formenti et E. Hirst (2003a). "Radiative properties and direct radiative effect of Saharan dust measured by the C-130 aircraft during SHADE: 1. Solar spectrum". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* (1984–2012) 108.D18.
- Haywood, J. M., S. R. Osborne et S. J. Abel (2004). "The effect of overlying absorbing aerosol layers on remote sensing retrievals of cloud effective radius and cloud optical

depth". In: Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society 130.598, p. 779–800.

- Haywood, J. M., S. R. Osborne, P. N. Francis, A. Keil, P. Formenti, M. O. Andreae et P. H. Kaye (2003b). "The mean physical and optical properties of regional haze dominated by biomass burning aerosol measured from the C-130 aircraft during SAFARI 2000". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)* 108.D13.
- Haywood, J. M., J. Pelon, P. Formenti, N. Bharmal, M. Brooks, G. Capes, P. Chazette,
 C. Chou, S. Christopher, H. Coe, J. Cuesta, Y. Derimian, K. Desboeufs, G. Greed,
 M. Harrison, B. Heese, E. J. Highwood, B. Jonhson, M. Mallet, B. Marticorena,
 J. Marsham, S. Milton, G. Myhre, S. R. Osborne, P. D. J, R.-L. Rajot, M. Schulz,
 A. Slingo, D. Tanré et P. Tulet (2008). "Overview of the dust and biomass-burning
 experiment and African monsoon multidisciplinary analysis special observing period0". In: Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012) 113.D23.
- Herman, J. R., P. K. Bhartia, O. Torres, C. Hsu, C. Seftor et E. Celarier (1997). "Global distribution of UV-absorbing aerosols from Nimbus 7/TOMS data". In: *Journal of Geophysical Research:* Atmospheres (1984–2012) 102.16, p. 911–16.
- Herman, M., J. Y. Balois, L. Gonzalez, P. Lecomte, J. Lenoble, R. Santer et C. Verwaerde (1986). "Stratospheric aerosol observations from a balloon-borne polarimetric experiment". In: *Applied optics* 25.19, p. 3573–3584.
- Herman, M., J.-L. Deuzé, A. Marchand, B. Roger et P. Lallart (2005). "Aerosol remote sensing from POLDER/ADEOS over the ocean: Improved retrieval using a nonspherical particle model". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* (1984–2012) 110.D10.
- Heymsfield, A. J. et J. Iaquinta (2000). "Cirrus crystal terminal velocities". In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 57.7, p. 916–938.
- Hill, A. A. et S. Dobbie (2008). "The impact of aerosols on non-precipitating marine stratocumulus. II: The semi-direct effect". In: Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society 134.634, p. 1155–1165.
- Hu, Y., M. Vaughan, Z. Liu, K. Powell et S. Rodier (2007). "Retrieving optical depths and lidar ratios for transparent layers above opaque water clouds from CALIPSO lidar measurements". In: *Geoscience and Remote Sensing Letters, IEEE* 4.4, p. 523–526.
- 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.
- Irvine, W. M. (1968). "Multiple scattering by large particles. II. Optically thick layers". In: Astrophysical Journal 152, p. 823.
- Jaffe, D., I. Bertschi, L. Jaeglé, P. Novelli, J. S. Reid, H. Tanimoto, R. Vingarzan et D. L. Westphal (2004). "Long-range transport of Siberian biomass burning emissions and impact on surface ozone in western North America". In: Geophysical Research Letters 31.16.

Jethva, H., O. Torres, L. A. Remer et P. K. 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". In: Geoscience and Remote Sensing, IEEE Transactions on 51.7, p. 3862–3870.

- Jethya, H., O. Torres, F. Waquet, D. Chand et Y. Hu (2014). "How do A-train sensors intercompare in the retrieval of above-cloud aerosol optical depth? A case study-based assessment". In: Geophysical Research Letters 41.1, p. 186–192.
- Johnson, B. T., S. R. Osborne, J. M. Haywood et M. A. J. Harrison (2008). "Aircraft measurements of biomass burning aerosol over West Africa during DABEX". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)* 113.D23.
- Johnson, B. T., K. P. Shine et P. M. Forster (2004). "The semi-direct aerosol effect: Impact of absorbing aerosols on marine stratocumulus". In: Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society 130.599, p. 1407–1422.
- Kasten, F. (1968). "Rayleigh-Cabannes-Streuung in trockener Luft unter Berücksichtigung neuerer Depolarisations-Messungen". In: Optik 27, p. 155–166.
- Kaufman, Y. J., D. Tanré et O. Boucher (2002). "A satellite view of aerosols in the climate system". In: *Nature* 419.6903, p. 215–223.
- Kawata, Y. (1978). "Circular polarization of sunlight reflected by planetary atmospheres". In: *Icarus* 33.1, p. 217–232.
- Keil, A. et J. M. Haywood (2003). "Solar radiative forcing by biomass burning aerosol particles during SAFARI 2000: A case study based on measured aerosol and cloud properties". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* (1984–2012) 108.D13.
- Kinne, S., M. Schulz, C. Textor, S. Guibert, Y. Balkanski, S. E. Bauer, T. Berntsen, T. F. Berglen, O. Boucher, M. Chin, W. Collins, F. Dentener, T. Diehl, R. Easter, J. Feichter, D. Fillmore, S. Ghan, P. Ginoux, S. Gong, A. Grini, J. Hendricks, M. Herzog, L. Horowitz, I. Isaksen, T. Iversen, A. Kirkevåg, S. Kloster, D. Koch, J. E. Kristjansson, M. Krol, A. Lauer, J. F. Lamarque, G. Lesins, X. Liu, U. Lohmann, V. Montanaro, G. Myhre, J. Penner, G. Pitari, S. Reddy, Ø. Seland, P. Stier, T. Takemura et X. Tie (2006). "An AeroCom initial assessment optical properties in aerosol component modules of global models". In: Atmospheric Chemistry and Physics 6.7, p. 1815–1834.
- Knap, W. H., L.-C. Labonnote, G. Brogniez et P. Stammes (2005). "Modeling total and polarized reflectances of ice clouds: evaluation by means of POLDER and ATSR-2 measurements". In: *Applied Optics* 44.19, p. 4060–4073.
- Knobelspiesse, K., B. Cairns, J. Redemann, R. W. Bergstrom et A. Stohl (2011). "Simultaneous retrieval of aerosol and cloud properties during the MILAGRO field campaign". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 11.13, p. 6245–6263.
- Koch, D. et A. D. Del Genio (2010). "Black carbon semi-direct effects on cloud cover: review and synthesis". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 10.16, p. 7685–7696.
- Koffi, B., M. Schulz, F.-M. Bréon, J. Griesfeller, D. Winker, Y. Balkanski, S. Bauer, T. Berntsen, M. Chin, W. D. Collins, F. Dentener, T. Diehl, R. Easter, S. Ghan, P. Ginoux, S. Gong, L. W. Horowitz, T. Iversen, A. Kirkevåg, D. Koch, M. Krol, G.

Myhre, P. Stier et T. Takemura (2012). "Application of the CALIOP layer product to evaluate the vertical distribution of aerosols estimated by global models: AeroCom phase I results". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)* 117.D10.

- Koren, I., Y. J. Kaufman, L. A. Remer et J. V. Martins (2004). "Measurement of the effect of Amazon smoke on inhibition of cloud formation". In: *Science* 303.5662, p. 1342–1345.
- Koren, I., J. V. Martins, L. A. Remer et H. Afargan (2008). "Smoke invigoration versus inhibition of clouds over the Amazon". In: *science* 321.5891, p. 946–949.
- Labonnote, L.-C., G. Brogniez, M. Doutriaux-Boucher, J.-C. Buriez, J.-F. Gayet et H. Chepfer (2000). "Modeling of light scattering in cirrus clouds with inhomogeneous hexagonal monocrystals. Comparison with in-situ and ADEOS-POLDER measurements". In: Geophysical research letters 27.1, p. 113–116.
- Lau, K. M., M. K. Kim et K. M. Kim (2006). "Asian summer monsoon anomalies induced by aerosol direct forcing: the role of the Tibetan Plateau". In: *Climate Dynamics* 26.7-8, p. 855–864.
- Leahy, L. V., T. L. Anderson, T. Eck et R. W. Bergstrom (2007). "A synthesis of single scattering albedo of biomass burning aerosol over southern Africa during SAFARI 2000". In: Geophysical research letters 34.12.
- Lee, K. H., J. E. Kim, Y. J. Kim, J. Kim et W. von Hoyningen-Huene (2005). "Impact of the smoke aerosol from Russian forest fires on the atmospheric environment over Korea during May 2003". In: *Atmospheric Environment* 39.1, p. 85–99.
- Lenoble, J., L. Remer et D. Tanré (2013). *Aerosol Remote Sensing*. Springer-Praxis books in environmental sciences. Springer Berlin Heidelberg.
- 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.
- Lenoble, J. (1985). Radiative transfer in scattering and absorbing atmospheres: standard computational procedures. T. 1. 2. A. Deepak Hampton, VA.
- Liu, Z., R. Kuehn, M. Vaughan, D. Winker, A. Omar, K. Powell, C. Trepte, Y. Hu et C. Hostetler (2010). "The CALIPSO cloud and aerosol discrimination: Version 3 algorithm and test results". In: 25th International Laser Radar Conference (ILRC), St. Petersburg, Russia, p. 5–9.
- Lund Myhre, C., C. Toledano, G. Myhre, K. Stebel, K. E. Yttri, V. Aaltonen, M. Johnsrud, M. Frioud, V. Cachorro, A. de Frutos, H. Lihavainen, J. R. Campbell, A. P. Chaikovsky, M. Shiobara, E. J. Welton et K. Tørseth (2007). "Regional aerosol optical properties and radiative impact of the extreme smoke event in the European Arctic in spring 2006". In: Atmospheric Chemistry and Physics 7.22, p. 5899–5915.
- Marshak, A. et A. Davis (2005). 3D Radiative Transfer in Cloudy Atmospheres. Physics of Earth and Space Environments. Springer.
- Marshak, A., A. Davis, R. F. Cahalan et W. Wiscombe (1998). "Nonlocal independent pixel approximation: Direct and inverse problems". In: *Geoscience and Remote Sensing, IEEE Transactions on* 36.1, p. 192–205.

McCormick, R. A. et J. H. Ludwig (1967). "Climate modification by atmospheric aerosols". In: *Science* 156.3780, p. 1358–1359.

- McFarquhar, G. M. et H. Wang (2006). "Effects of aerosols on trade wind cumuli over the Indian Ocean: Model simulations". In: Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society 132.616, p. 821–843.
- Menon, S. et A. D. Del Genio (2007). "Evaluating the impacts of carbonaceous aerosols on clouds and climate". In: *Human-Induced Climate Change: An Interdisciplinary Assessment*, p. 34–48.
- 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 a t http://modis-atmos.gsfc.nasa.gov/docs/CTPATBDoct10.pdf (last access: April 2013).
- Metropolis, N. et S. Ulam (1949). "The Monte Carlo Method". In: *Journal of the American statistical association* 44.247, p. 335–341.
- Meyer, K., S. Platnick, L. Oreopoulos et D. Lee (2013). "Estimating the direct radiative effect of absorbing aerosols overlying marine boundary layer clouds in the southeast Atlantic using MODIS and CALIOP". In: *Journal of Geophysical Research:* Atmospheres 118.10, p. 4801–4815.
- Meyer, K., S. Platnick et Z. Zhang (2015). "Simultaneously inferring above-cloud absorbing aerosol optical thickness and underlying liquid phase cloud optical and microphysical properties using MODIS". In: *Journal of Geophysical Research:* Atmospheres.
- Miller, R. L., I. Tegen et J. Perlwitz (2004). "Surface radiative forcing by soil dust aerosols and the hydrologic cycle". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* (1984–2012) 109.D4.
- Min, M. et Z. Zhang (2014). "On the influence of cloud fraction diurnal cycle and sub-grid cloud optical thickness variability on all-sky direct aerosol radiative forcing". In: Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 142, p. 25–36.
- Mishchenko, M. I., J. W. Hovenier et L. D. Travis (1999). Light Scattering by Nonspherical Particles: Theory, Measurements, and Applications. Elsevier Science.
- Mishchenko, M. I., L. D. Travis et D. L. Mackowski (1996). "T-matrix computations of light scattering by nonspherical particles: a review". In: *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 55.5, p. 535–575.
- Mortier, A. (2013). "Tendances et variabilités de l'aérosol atmosphérique à l'aide du couplage Lidar/Photomètre sur les sites de Lille et Dakar". Thèse de doct. Lille 1.
- Myhre, G., B. H. Samset, M. Schulz, Y. Balkanski, S. Bauer, T. K. Berntsen, H. Bian, N. Bellouin, M. Chin, T. Diehl, R. C. Easter, J. Feicher, S. J. Ghan, D. Hauglustaine, T. Iversen, S. Kinne, A. Kirkevåg, J.-F. Lamarque, G. Lin, X. Liu, M. T. Lund, G. Luo, X. Ma, T. van Noije, J. E. Penner, P. J. Rasch, A. Ruiz, Ø. Selan, R. B. Skeie, P. Stier, T. Takemura, K. Tsigaridis, P. Wang, Z. Wang, L. Xu, H. Yu, F. Yu, J.-H. Yoon, K. Zhank, H. Zhang et C. Zhou (2013a). "Radiative forcing of the direct aerosol effect from AeroCom Phase II simulations". In: Atmospheric Chemistry and Physics 13.4, p. 1853–1877.

Myhre, G., D. Shindell, F.-M. Bréon, W. Collins, J. Fuglestvedt, J. Huang, D. Koch, J.-F. Lamarque, D. Lee, B. Mendoza, T. Nakajima, A. Robock, G. Stephens, T. Takemura et H. Zhang (2013b). "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. Sous la dir. de Stocker, T. F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S. K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex et P. M. Midgley. Cambridge, United Kingdom et New York, NY, USA: Cambridge University Press. Chap. 8, p. 659–740.

- Myhre, G., N. Bellouin, T. F. Berglen, T. K. Berntsen, O. Boucher, A. Grini, I. S. Isaksen, M. Johnsrud, M. I. Mishchenko, F. Stordal et D. Tanré (2007). "Comparison of the radiative properties and direct radiative effect of aerosols from a global aerosol model and remote sensing data over ocean". In: *Tellus B* 59.1, p. 115–129.
- Myhre, G., T. F. Berglen, M. Johnsrud, C. R. Hoyle, T. K. Berntsen, S. A. Christopher, D. W. Fahey, I. S. A. Isaksen, T. A. Jones, R. A. Kahn, N. Loeb, P. Quinn, L. Remer, J. P. Schwarz et Y. K. E (2009). "Modelled radiative forcing of the direct aerosol effect with multi-observation evaluation". In: *Atmospheric Chemistry Physics* 9.4, p. 1365–1392.
- 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.
- Oikawa, E., T. Nakajima, T. Inoue et D. Winker (2013). "A study of the shortwave direct aerosol forcing using ESSP/CALIPSO observation and GCM simulation". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 118.9, p. 3687–3708.
- Omar, A. H., D. M. Winker, M. A. Vaughan, Y. Hu, C. R. Trepte, R. A. Ferrare, K.-P. Lee, C. A. Hostetler, C. Kittaka, R. R. Rogers et R. A. Kuehn (2009). "The CALIPSO automated aerosol classification and lidar ratio selection algorithm". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 26.10, p. 1994–2014.
- Oreopoulos, L., R. F. Cahalan, A. Marshak et G. Wen (2000). "A new normalized difference cloud retrieval technique applied to Landsat radiances over the Oklahoma ARM site". In: *Journal of Applied Meteorology* 39.12, p. 2305–2321.
- Paris, J.-D., A. Stohl, P. Nédélec, M. Y. Arshinov, M. V. Panchenko, V. P. Shmargunov, K. S. Law, B. D. Belan et P. Ciais (2009). "Wildfire smoke in the Siberian Arctic in summer: source characterization and plume evolution from airborne measurements". In: Atmospheric Chemistry and Physics 9.23, p. 9315–9327.
- Peers, F., F. Waquet, C. Cornet, P. Dubuisson, F. Ducos, P. Goloub, F. Szczap, D. Tanré et F. Thieuleux (2015). "Absorption of aerosols above clouds from POLDER/PARASOL measurements and estimation of their Direct Radiative Effect". In: Atmospheric Chemistry and Physics 15.8, p. 4179–4196.
- Penner, J. E., M. Andreae, H. Annegarn, L. Barrie, J. Feichter, D. Hegg, A. Jayaraman,
 R. Leaitch, D. Murphy, J. Nganga, A. Pitari G Ackerman, P. Adams, P. Austin,
 R. Boers, O. Boucher, M. Chin, C. Chuang, B. Collins, W. Cooke, P. DeMott, Y.
 Feng, H. Fiscer, F. I, S. Ghan, P. Ginoux, S.-L. Gong, A. Guenther, M. Herzog,
 A. Higurashi, Y. Kaufman, A. Kettle, J. Kiehl, D. Koch, G. Lammel, C. Land,

U. Lohmann, S. Madronich, E. Macini, M. Mishchenko, T. Nakajima, P. Quinn, P. Rasch, D. L. Roberts, D. Savoie, S. Schwartz, J. Seinfeld, B. Soden, D. Tanré, K. Taylor, I. Tegen, X. Tie, G. Vali, R. Van Dingenen, M. van Weele et Y. Zhang (2001). "Aerosols, their direct and indirect effects". In: Climate Change 2001: The Scientific Basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge, United Kingdom et New York, NY, USA: Cambridge University Press. Chap. 8, p. 289–348.

- Péré, J. C., B. Bessagnet, M. Mallet, F. Waquet, I. Chiapello, F. Minvielle, V. Pont et L. Menut (2014). "Direct radiative effect of the Russian wildfires and its impact on air temperature and atmospheric dynamics during August 2010". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 14.4, p. 1999–2013.
- Planton, S., L. Bopp, E. Brun, J. Cattiaux, F. Chauvin, M. Chevallier, P. Ciais, H. Douville, G. Giraud, J. M. Soubeyroux et L. Terray (2015). "Évolution du climat depuis 1850". In: *La Météorologie* 88, p. 48–55.
- Podgorny, I. et V. Ramanathan (2001). "A modeling study of the direct effect of aerosols over the tropical Indian Ocean". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* (1984–2012) 106.D20, p. 24097–24105.
- Polashenski, C. M., J. E. Dibb, M. G. Flanner, J. Y. Chen, Z. R. Courville, A. M. Lai, J. J. Schauer, M. M. Shafer et M. Bergin (2015). "Neither dust nor black carbon causing apparent albedo decline in Greenland's dry snow zone: Implications for MODIS C5 surface reflectance". In: Geophysical Research Letters 42.21, p. 9319–9327.
- Quennehen, B., A. Schwarzenboeck, A. Matsuki, J. Burkhart, A. Stohl, G. Ancellet et K. S. Law (2012). "Anthropogenic and forest fire pollution aerosol transported to the Arctic: observations from the POLARCAT-France spring campaign". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 12.14, p. 6437–6454.
- 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.
- Riedi, J. (2001). "Analyse de la phase thermodynamique des nuages à l'échelle globale : utilisation des mesures de polarisation du radiomètre spatial POLDER1/ADESOS1". Thèse de doct. Lille 1.
- Robock, A. (2000). "Volcanic eruptions and climate". In: Reviews of Geophysics 38.2, p. 191–219.
- Rochas, M. (1925). L'atlas international des nuages. Paris, FRANCE : Société météorologique de France.
- Rossow, W. B., L. C. Garder et A. A. Lacis (1989). "Global, seasonal cloud variations from satellite radiance measurements. Part I: Sensitivity of analysis". In: *Journal of Climate* 2.5, p. 419–458.
- Saleh, R., E. S. Robinson, D. S. Tkacik, A. T. Ahern, S. Liu, A. C. Aiken, R. C. Sullivan, A. A. Presto, M. K. Dubey, R. J. Yokelson, M. D. Neil et A. L. Robinson (2014).

"Brownness of organics in aerosols from biomass burning linked to their black carbon content". In: *Nature Geoscience* 7.9, p. 647–650.

- Samset, B., G. Myhre, M. Schulz, Y. Balkanski, S. Bauer, T. Berntsen, H. Bian, N. Bellouin, T. Diehl, R. C. Easter, S. J. Ghan, T. Iversen, S. Kinne, A. Kirkevåg, J.-F. Lamarque, G. Lin, X. Liu, J. E. Penner, Ø. Seland, R. B. Skieie, P. Stier, T. Takemura, K. Tsigaridis et K. Zhang (2013). "Black carbon vertical profiles strongly affect its radiative forcing uncertainty". In: Atmospheric Chemistry and Physics 13, p. 2423–2434.
- Satheesh, S. K. et K. Krishna Moorthy (2005). "Radiative effects of natural aerosols: A review". In: *Atmospheric Environment* 39.11, p. 2089–2110.
- Sayer, A. M., N. C. Hsu, T. F. Eck, A. Smirnov et 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". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 14.20, p. 11493–11523.
- Schultz, M., M. van het Bolscher, T. Pulles, R. Brand, J. Pereira et A. Spessa (2007). RETRO report on emission data sets and methodologies for estimating emissions. Workpacage 1. Rapp. tech. Deliverable D1-6, Tech. rep., EU-Contract No. EVK2-CT-2002-00170, disponible à : http://retro.enes.org/reports/D1-6final.pdf.
- Schulz, M., C. Textor, S. Kinne, Y. Balkanski, S. Bauer, T. Berntsen, T. Berglen, O. Boucher, F. Dentener, S. Guibert, I. S. A. Isaksen, T. Iversen, D. Koch, A. Kirkevåg, X. Liu, V. Montanaro, G. Myhre, J. E. Penner, G. Pitari, S. Reddy, Ø. Seland, P. Stier et T. Takemura (2006). "Radiative forcing by aerosols as derived from the AeroCom present-day and pre-industrial simulations". In: Atmospheric Chemistry and Physics 6.12, p. 5225–5246.
- Schutgens, N. A. J., D. G. Partridge et P. Stier (2015). "The importance of temporal collocation for the evaluation of aerosol models with observations". In: *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions* 15.18, p. 26191–26230.
- 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 et D. W. Fahey (2013). "Global-scale seasonally resolved black carbon vertical profiles over the Pacific". In: *Geophysical Research Letters* 40.20, p. 5542–5547.
- Schwarz, J. P., J. R. Spackman, R. S. Gao, L. A. Watts, P. Stier, M. Schulz, S. M. Davis, S. C. Wofsy et D. W. Fahey (2010). "Global-scale black carbon profiles observed in the remote atmosphere and compared to models". In: *Geophysical Research Letters* 37.18.
- Skeie, R. B., T. Berntsen, G. Myhre, C. A. Pedersen, J. Ström, S. Gerland et J. A. Ogren (2011). "Black carbon in the atmosphere and snow, from pre-industrial times until present". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 11.14, p. 6809–6836.
- Stamnes, K., S.-C. Tsay, W. Wiscombe et K. Jayaweera (1988). "Numerically stable algorithm for discrete-ordinate-method radiative transfer in multiple scattering and emitting layered media". In: *Applied optics* 27.12, p. 2502–2509.
- Stein, D. C., R. J. Swap, S. Greco, S. J. Piketh, S. A. Macko, B. G. Doddridge, T. Elias et R. T. Bruintjes (2003). "Haze layer characterization and associated

meteorological controls along the eastern coastal region of southern Africa". In: Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012) 108.D13.

- Stephens, G. L., N. B. Wood et L. A. Pakula (2004). "On the radiative effects of dust on tropical convection". In: *Geophysical research letters* 31.23.
- 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.
- Stier, P., J. Feichter, S. Kinne, S. Kloster, E. Vignati, J. Wilson, L. Ganzeveld, I. Tegen, M. Werner, Y. Balkanski, M. Schulz, O. Boucher, A. Minikin et P. A (2005). "The aerosol-climate model ECHAM5-HAM". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 5.4, p. 1125–1156.
- Stocks, B. J., B. M. Wotton, M. D. Flannigan, M. A. Fosberg, D. R. Cahoon et J. G. Goldammer (2001). "Boreal forest fire regimes and climate change". In: *Remote Sensing and Climate Modeling: Synergies and Limitations*. Springer, p. 233–246.
- Stohl, A., T. Berg, J. Burkhart, A. Fjæraa, C. Forster, A. Herber, Ø. Hov, C. Lunder, W. McMillan, S. Oltmans, M. Shiobara, D. Simpson, S. Solberg, K. Stebel, J. Ström, K. Tørseth, R. Treffeisen, K. Virkkunen et K. E. Yttri (2007). "Arctic smoke–record high air pollution levels in the European Arctic due to agricultural fires in Eastern Europe in spring 2006". In: Atmospheric Chemistry and Physics 7.2, p. 511–534.
- Stokes, G. G. (1852). "On the change of refrangibility of light". In: *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, p. 463–562.
- Su, W., N. G. Loeb, G. L. Schuster, M. Chin et F. G. Rose (2013). "Global all-sky shortwave direct radiative forcing of anthropogenic aerosols from combined satellite observations and GOCART simulations". In: *Journal of Geophysical Research:* Atmospheres 118.2, p. 655–669.
- Swap, R. J., H. J. Annegarn, J. T. Suttles, J. Haywood, M. C. Helmlinger, C. Hely, P. V. Hobbs, B. N. Holben, J. Ji, M. D. King, T. Landmann, W. Maenhaut, L. Otter, B. Park, S. J. Piketh, S. Platnick, J. Privette, D. Roy, A. M. Thompson, D. Ward et R. Yokelson (2002). "The Southern African Regional Science Initiative (SAFARI 2000): overview of the dry season field campaign". In: South African Journal of Science 98.3 & 4, p-125.
- Swap, R. J., H. J. Annegarn, J. T. Suttles, M. D. King, S. Platnick, J. L. Privette et R. J. Scholes (2003). "Africa burning: a thematic analysis of the Southern African Regional Science Initiative (SAFARI 2000)". In: *Journal of Geophysical Research:* Atmospheres (1984–2012) 108.D13.
- Szczap, F., Y. Gour, T. Fauchez, C. Cornet, T. Faure, O. Jourdan, G. Penide et P. Dubuisson (2014). "A flexible three-dimensional stratocumulus, cumulus and cirrus cloud generator (3DCLOUD) based on drastically simplified atmospheric equations and the Fourier transform framework". In: Geoscientific Model Development Discussions 7.1, p. 295–337.

Szczap, F., H. Isaka, M. Saute, B. Guillemet et A. Ioltukhovski (2000). "Effective radiative properties of bounded cascade absorbing clouds: Definition of an effective single-scattering albedo". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)* 105.D16, p. 20635–20648.

- Takemura, T., M. Egashira, K. Matsuzawa, H. Ichijo, R. O'ishi et A. Abe-Ouchi (2009). "A simulation of the global distribution and radiative forcing of soil dust aerosols at the Last Glacial Maximum". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 9.9, p. 3061–3073.
- Takemura, T., T. Nozawa, S. Emori, T. Y. Nakajima et T. Nakajima (2005). "Simulation of climate response to aerosol direct and indirect effects with aerosol transport-radiation model". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)* 110.D2.
- Takemura, T., H. Okamoto, Y. Maruyama, A. Numaguti, A. Higurashi et T. Nakajima (2000). "Global three-dimensional simulation of aerosol optical thickness distribution of various origins". In:
- Tanré, D., F. M. Bréon, J. Deuzé, O. Dubovik, F. Ducos, P. François, P. Goloub, M. Herman, A. Lifermann et F. Waquet (2011). "Remote sensing of aerosols by using polarized, directional and spectral measurements within the A-Train: the PARASOL mission". In: Atmospheric Measurement Techniques 4.7, p. 1383–1395.
- Tanré, D., M. Herman, P. Y. Deschamps et A. De Leffe (1979). "Atmospheric modeling for space measurements of ground reflectances, including bidirectional properties". In: *Applied Optics* 18.21, p. 3587–3594.
- Tanré, D. (2014). "Fin de la mission Parasol". In : La Météorologie 84.
- Textor, C., M. Schulz, S. Guibert, S. Kinne, Y. Balkanski, S. Bauer, T. Berntsen, T. Berglen, O. Boucher, M. Chin, F. Dentener, T. Diehl, R. Easter, H. Feichter, D. Fillmore, S. Ghan, P. Ginoux, S. Gong, A. Grini, J. Hendricks, L. Horowitz, P. Huang, I. Isaksen, I. Iversen, S. Kloster, D. Koch, A. Kirkevåg, J. E. Kristjansson, M. Krol, A. Lauer, J. F. Lamarque, X. Liu, V. Montanaro, G. Myhre, J. Penner, G. Pitari, S. Reddy, Ø. Seland, P. Stier, T. Takemura et X. Tie (2006). "Analysis and quantification of the diversities of aerosol life cycles within AeroCom". In: Atmospheric Chemistry and Physics 6.7, p. 1777–1813.
- Textor, C., M. Schulz, S. Guibert, S. Kinne, Y. Balkanski, S. Bauer, T. Berntsen, T. Berglen, O. Boucher, M. Chin, F. Dentener, T. Diehl, J. Feichter, D. Fillmore, P. Ginoux, S. Gong, A. Grini, J. Hendricks, L. Horowitz, P. Huang, I. S. A. Isaksen, T. Iversen, S. Kloster, D. Koch, A. Kirkevåg, J. E. Kristjansson, M. Krol, A. Lauer, J. F. Lamarque, X. Liu, V. Montanaro, G. Myhre, J. E. Penner, G. Pitari, M. S. Reddy, Ø. Seland, P. Stier, T. Takemura et X. Tie (2007). "The effect of harmonized emissions on aerosol properties in global models an AeroCom experiment". In: Atmospheric Chemistry and Physics 7.17, p. 4489–4501.
- Torres, O., H. Jethva et P. K. Bhartia (2012). "Retrieval of aerosol optical depth above clouds from OMI observations: Sensitivity analysis and case studies". In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 69.3, p. 1037–1053.

Twomey, S. (1974). "Pollution and the planetary albedo". In: Atmospheric Environment (1967) 8.12, p. 1251–1256.

- van der Werf, G. R., J. T. Randerson, L. Giglio, G. J. Collatz, M. Mu, P. S. Kasibhatla, D. C. Morton, R. S. DeFries, Y. Jin et T. T. van Leeuwen (2010). "Global fire emissions and the contribution of deforestation, savanna, forest, agricultural, and peat fires (1997–2009)". In: Atmospheric Chemistry and Physics 10.23, p. 11707–11735.
- 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.
- Vaughan, M. A., K. A. Powell, D. M. Winker, C. A. Hostetler, R. E. Kuehn, W. H. Hunt, B. J. Getzewich, S. A. Young, Z. Liu et M. J. McGill (2009). "Fully automated detection of cloud and aerosol layers in the CALIPSO lidar measurements". In: Journal of Atmospheric and Oceanic Technology 26.10, p. 2034–2050.
- Veira, A., S. Kloster, S. Wilkenskjeld et S. Remy (2015). "Fire emission heights in the climate system-Part 1: Global plume height patterns simulated by ECHAM6-HAM2". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 15.13, p. 7155–7171.
- Vignati, E., J. Wilson et P. Stier (2004). "M7: An efficient size-resolved aerosol microphysics module for large-scale aerosol transport models". In: *Journal of Geophysical Research:* Atmospheres (1984–2012) 109.D22.
- Volten, H., O. Munoz, E. Rol, J. d. Haan, W. Vassen, J. Hovenier, K. Muinonen et T. Nousiainen (2001). "Scattering matrices of mineral aerosol particles at 441.6 nm and 632.8 nm". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)* 106.D15, p. 17375–17401.
- Waquet, F., C. Cornet, J.-L. Deuzé, O. Dubovik, F. Ducos, P. Goloub, M. Herman, T. Lapyonok, L.-C. Labonnote, J. Riedi, D. Tanré, F. Thieuleux et C. Vanbauce (2013a). "Retrieval of aerosol microphysical and optical properties above liquid clouds from POLDER/PARASOL polarization measurements". In: Atmospheric Measurement Techniques 6.4, p. 991–1016.
- Waquet, F., F. Peers, F. Ducos, P. Goloub, S. Platnick, J. Riedi, D. Tanré et F. Thieuleux (2013b). "Global analysis of aerosol properties above clouds". In: *Geophysical Research Letters* 40.21, p. 5809–5814.
- Waquet, F., F. Peers, P. Goloub, F. Ducos, F. Thieuleux, Y. Derimian, J. Riedi, M. Chami et D. Tanré (2014). "Retrieval of the Eyjafjallajökull volcanic aerosol optical and microphysical properties from POLDER/PARASOL measurements". In: Atmospheric Chemistry and Physics 14.4, p. 1755–1768.
- Waquet, F., J. C. Péré, F. Peers, P. Goloub, F. Ducos, F. Thieuleux et D. Tanré (en préparation). "Global detection of absorbing aerosols over the ocean".
- Waquet, F., J. Riedi, L.-C. Labonnote, P. Goloub, B. Cairns, J.-L. Deuzé et D. Tanré (2009). "Aerosol remote sensing over clouds using A-Train observations". In: *Journal* of the Atmospheric Sciences 66.8, p. 2468–2480.
- Warneke, C., R. Bahreini, J. Brioude, C. A. Brock, J. A. De Gouw, D. W. Fahey, K. D. Froyd, J. S. Holloway, A. Middlebrook, L. Miller, S. Montzka, D. M. Murphy, J.

Peischl, T. B. Ryerson, J. P. Schwarz, J. R. Spackman et P. Veres (2009). "Biomass burning in Siberia and Kazakhstan as an important source for haze over the Alaskan Arctic in April 2008". In: *Geophysical Research Letters* 36.2.

- WCP (1986). "A preliminary cloudless standard atmosphere for radiation computation". In: WCP-112, WMO/TD-No. 24. World Meteorological Organization Geneva.
- Wilcox, E. M. (2012). "Direct and semi-direct radiative forcing of smoke aerosols over clouds". In: Atmospheric Chemistry and Physics 12.1, p. 139–149.
- Wilcox, E. M., Harshvardhan et S. Platnick (2009). "Estimate of the impact of absorbing aerosol over cloud on the MODIS retrievals of cloud optical thickness and effective radius using two independent retrievals of liquid water path". In: *Journal of Geophysical Research:* Atmospheres (1984–2012) 114.D5.
- Winker, D. M., M. A. Vaughan, A. Omar, Y. Hu, K. A. Powell, Z. Liu, W. H. Hunt et S. A. Young (2009). "Overview of the CALIPSO mission and CALIOP data processing algorithms". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 26.11, p. 2310–2323.
- Wiscombe, W. J. (1977). "The delta-M method: rapid yet accurate radiative flux calculations for strongly asymmetric phase functions". In: *Journal of the atmospheric sciences* 34.9, p. 1408–1422.
- Yang, P., B. A. Baum, A. J. Heymsfield, Y. X. Hu, H.-L. Huang, S.-C. Tsay et S. Ackerman (2003). "Single-scattering properties of droxtals". In: *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 79, p. 1159–1169.
- Young, A. T. (1980). "Revised depolarization corrections for atmospheric extinction". In: Applied Optics 19.20, p. 3427–3428.
- Young, S. A. et M. A. Vaughan (2009). "The retrieval of profiles of particulate extinction from Cloud-Aerosol Lidar Infrared Pathfinder Satellite Observations (CALIPSO) data: Algorithm description". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 26.6, p. 1105–1119.
- Yu, H., Y. J. Kaufman, M. Chin, G. Feingold, L. A. Remer, T. L. Anderson, Y. Balkanski, N. Bellouin, O. Boucher, S. Christopher, P. DeCola, R. Kahn, D. Koch, N. Loeb, M. S. Reddy, M. Schulz, T. Takemura et Z. M (2006). "A review of measurement-based assessments of the aerosol direct radiative effect and forcing". In: Atmospheric Chemistry and Physics 6.3, p. 613–666.
- Zeng, S., C. Cornet, F. Parol, J. Riedi et F. Thieuleux (2012). "A better understanding of cloud optical thickness derived from the passive sensors MODIS/AQUA and POLDER/PARASOL in the A-Train constellation". In: Atmospheric Chemistry and Physics 12.23, p. 11245–11259.
- Zhang, K., D. O'donnell, J. Kazil, P. Stier, S. Kinne, U. Lohmann, S. Ferrachat, B. Croft, J. Quaas, H. Wan, S. Rast et J. Feitcher (2012). "The global aerosol-climate model ECHAM-HAM, version 2: sensitivity to improvements in process representations". In: Atmospheric Chemistry and Physics 12.19, p. 8911–8949.
- Zhang, P., N.-m. Lu, X.-q. Hu et C.-h. Dong (2006). "Identification and physical retrieval of dust storm using three MODIS thermal IR channels". In: *Global and Planetary Change* 52.1, p. 197–206.

Zhang, Y.-H., M. J. Wooster, O. Tutubalina et G. L. W. Perry (2003). "Monthly burned area and forest fire carbon emission estimates for the Russian Federation from SPOT VGT". In: Remote sensing of environment 87.1, p. 1–15.

- Zhang, Z., K. Meyer, S. Platnick, L. Oreopoulos, D. Lee et H. Yu (2014). "A novel method for estimating shortwave direct radiative effect of above-cloud aerosols using CALIOP and MODIS data". In: *Atmospheric Measurement Techniques* 7.6, p. 1777–1789.
- Zhang, Z., A. S. Ackerman, G. Feingold, S. Platnick, R. Pincus et H. Xue (2012). "Effects of cloud horizontal inhomogeneity and drizzle on remote sensing of cloud droplet effective radius: Case studies based on large-eddy simulations". In: *Journal of Geophysical Research* 117.D19.