



Universidad de Valladolid



PROGRAMA DE DOCTORADO EN FÍSICA

TESIS DOCTORAL:

**Identificación de tipos de aerosol mediante
medidas fotométricas. Aplicación al transporte
de aerosol sahariano hasta el Caribe**

Presentada por Cristian Velasco Merino para optar al
grado de
Doctor/a por la Universidad de Valladolid

Dirigida por:
Dr. Carlos Toledano Olmeda
Dr. David Mateos Villán

Este trabajo ha sido realizado en el
Grupo de Óptica Atmosférica de la Universidad de Valladolid



Agradecimientos

Hazlo o no lo hagas, pero no lo intentes - Yoda

Este es uno de los momentos en la vida de una persona en los que uno no puede evitar echar la vista atrás, y agradecer de corazón a las personas que han estado a mi lado y han sido esenciales para que este día llegase.

No ha sido un camino corto, ni fácil. No existen aún palabras para expresar lo agradecido que le estoy a todos mis compañeros de trabajo del Grupo de Óptica Atmosférica. Sobre todo, por haberme ayudado, apoyado y arropado en el que haya sido, probablemente, el peor año de mi vida. A Ángel y Victoria por darme la oportunidad de formar parte del equipo allá por 2014 (y por ser unos de los mejores caseros que uno pueda pedir). No creo que conozca jamás a unos “jefes” como vosotros. A mis directores de tesis Carlos y David por guiarme durante todos estos años y por enseñarme tanto... Bueno, y en ocasiones por aguantar mi genio. Sin vuestro conocimiento y enseñanzas jamás podría haber realizado este trabajo. Para mí sois mucho más que unos directores de tesis. Por supuesto a mis compañeros de trabajo de todos estos años; Ramiro, Rober, David (el original), Burguitos, Juan Carlos, Marcos, Sara, Patricia y Rogelio. Aunque con algunos he vivido más momentos épicos que con otros, a día de hoy, os considero a todos y todas más amigos que compañeros.

También tengo mucho que agradecer a Inma. Ella me llevó de la mano (literalmente) al despacho de Ángel para que me fichase. Gracias también por todo lo que me has enseñado tanto dentro como fuera de la carrera, no ha sido poco. Y por supuesto a su aprendiz Vero, que ha sido de las personas que más tardes me ha aguantado en la facultad durante mucho tiempo y con la que también he compartido mucho.

A mis padres que, aunque hoy no puedan compartir este día conmigo, se que estarían muy orgullosos de mí. Y sé que hubiesen fardado un poco de hijo con los amigos. Es un poco cliché decir esto, pero he tenido a los mejores padres que un hijo podría desear tener y me han dado todo lo que una persona podría necesitar, sobre todo a nivel personal y espiritual. Me han enseñado a ser feliz y a siempre mirar hacia delante con una sonrisa, sea como sea, pero siempre con una sonrisa. A mi hermano Nacho y mi cuñada Sheila por ayudarme tanto cuando lo he necesitado y por haber disfrutado conmigo cuando lo he necesitado (y un poco también por aguantar mi genio en ocasiones). También quiero dar las gracias a mi familia de Cáceres, Antonio, Puri, Rosa y Carlos. Me conocisteis empezando esta tesis, me aceptasteis como uno más en la familia y me habéis tratado como a otro hijo, y hoy seguís a mi lado. Espero que sigáis a mi lado cada año.

No puedo no dedicar un párrafo a todos mis amigos de Iscar (ya me entendéis). Me gusta referirme a ellos como “mi otra familia”, otros los llaman “la secta”. Sea como sea son uno de los pilares más importantes sobre los que me sustento. No solo me lo habéis dado todo cuando he estado mal y lo he necesitado, sino que me habéis regalado muchos de los mejores momentos de mi vida, que son los que al fin y al cabo recordamos cada vez que nos vemos o cada vez que hablo de vosotros. Esto ha ayudado mucho en los momentos más duros de esta

tesis doctoral. Por todo lo que hemos compartido y por todo lo que nos queda por compartir, gracias.

También quiero dar las gracias a mis amigos Erasmus, Scouts, de Cáceres y de la Universidad porque también gracias a ellos soy quien soy y he llegado hasta aquí. Cada uno a su manera ha dejado una huella importante que me ha ayudado de una manera u otra a lo largo de esta tesis.

Y, sobre todo, y ante todas las cosas, a Gema. Sin ti estoy seguro de que este día no sería posible. Me has dado el impulso que necesitaba en cada momento para no tirar la toalla. Has permanecido a mi lado, de manera incondicional, cuando más te he necesitado. ¡Hasta nos hemos casado en mitad de una pandemia! En definitiva, por haberte convertido en mi compañera de viaje. Una compañera que me hace reír al menos una vez al día. Una compañera que me ha dado los mejores momentos de mi tesis, y de mi vida. Por esto y por lo que nos queda... Gracias.

Por último, quería agradecer, también, a todas aquellas personas que cada vez que ven a un estudiante de doctorado NO le preguntan “¿Qué tal llevas la tesis?”. Eso no se pregunta...

Indice

Resumen	10
Abstract	11
Capitulo 1. Introducción, objetivos y estructura de la tesis	12
1.1. <i>El aerosol atmosférico</i>	12
1.2. <i>Objetivos</i>	13
1.3. <i>Estructura de la Tesis</i>	14
Capitulo 2. Propiedades y tipos de aerosol atmosférico	17
2.1. <i>Espesor Óptico de Aerosoles (AOD)</i>	17
2.2. <i>El exponente de Ångström (AE)</i>	19
2.3. <i>Modo fino y grueso del aerosol atmosférico</i>	20
2.4. <i>Propiedades Microfísicas</i>	20
2.4.1. Distribución de tamaños (VPSD).....	21
2.4.2. Esfericidad (SF)	22
2.4.3. Radio Efectivo (ER).....	23
2.5. <i>Propiedades Radiativas y Ópticas</i>	23
2.5.1. Albedo de dispersión simple (SSA, ω_0).....	23
2.5.2. Parámetro de Asimetría (g)	24
2.5.3. Índice de Refracción	25
2.6. <i>Clasificación de los diferentes tipos de aerosol según su origen y propiedades.</i>	26
Capitulo 3. Metodología	32
3.1. <i>La red AERONET y fotómetro CIMEL.</i>	32
3.1.1. La red AERONET.....	32
3.1.2. El fotómetro CIMEL	34
3.1.3. Protocolo de Calibración	38
3.2. <i>Otra instrumentación.</i>	41
3.2.1. Medidas de aerosoles en superficie (PM10 y concentración de polvo) ...	41
3.2.2. Lidar POLIS.....	42
3.2.3. Modelo HYSPLIT.....	43
Capitulo 4. Comparison of three different methodologies for the identification of high atmospheric turbidity episodes.....	45

Capítulo 5. Sun photometer retrievals of Saharan dust properties over Barbados during SALTRACE	71
Capítulo 6. Impact of long-range transport over the Atlantic Ocean on Saharan dust optical and microphysical properties	91
Capítulo 7. Conclusiones y líneas futuras	112
Líneas futuras	115
Bibliografía.....	116

Resumen

Este trabajo aborda el estudio de eventos de alta turbiedad atmosférica debida a aerosoles, que son las partículas en suspensión en la atmósfera. De forma particular, se ha investigado la identificación de episodios de polvo mineral del Sahara, las propiedades ópticas y microfísicas de este aerosol desértico y cómo se ven afectadas por el transporte sobre el Atlántico desde la costa oeste de África hasta la cuenca del Caribe. El estudio de los métodos actualmente empleados para la detección de eventos de alta turbiedad, indicó la necesidad de desarrollar un método automatizado de detección de dichos eventos de aerosol. Además se han introducido mejoras en el análisis de medidas radiométricas, como es incluir el canal de medida del infrarrojo medio (1640nm) para el análisis espectral del espesor óptico de aerosoles y en el estudio de los productos obtenidos mediante algoritmos de inversión. De esta manera, se ha podido observar un cambio significativo en los valores del modo grueso de la distribución de tamaños y del radio efectivo al ampliar el rango espectral. Esta tesis doctoral pone además de relevancia la necesidad de emplear series de datos largas, que permiten la caracterización de la evolución estacional de parámetros fundamentales de aerosoles y que son la base para cuantificar el impacto que supone que los aerosoles sean transportados grandes distancias durante varios días. Se presenta el primer análisis simultáneo a ambos lados del océano Atlántico utilizando series de 20 años de datos, proporcionando resultados detallados a cerca del número de días, en promedio, en los que el aerosol sahariano es transportado hasta la cuenca del Caribe, así como el porcentaje de pérdida de carga de aerosol que se produce durante este transporte. A pesar de este largo proceso, se mantienen prácticamente invariantes tanto sus propiedades ópticas como microfísicas.

Abstract

This work addresses the study of high atmospheric turbidity events due to aerosols, which are particles in suspension in the atmosphere. In particular, the identification of mineral dust episodes from the Sahara, the optical and microphysical properties of this desert aerosol and how they are affected by transport over the Atlantic from the west coast of Africa to the Caribbean basin have been investigated. The study of the methods currently used for the detection of high turbidity events indicated the need of developing an automated method for detection of these aerosol events. In addition, improvements have been made in the analysis of radiometric measurements, such as including the shortwave infrared measurement channel (1640nm) for the spectral analysis of the aerosol optical depth and in the study of the inversion derived products. In this way, it has been possible to observe a significant change in the coarse mode of the size distribution and the effective radius, when expanding the spectral range. This doctoral thesis also highlights the need to use long datasets, which allow characterizing the seasonal evolution of key aerosol parameters which are the basis for quantifying the impact of the long-range transport on the aerosol properties. The first simultaneous analysis on both sides of the Atlantic Ocean using 20-years of data is presented, providing detailed results about the number of days, on average, in which the Saharan aerosol is transported to the Caribbean basin, as well as the portion of aerosol load that is lost during this transport. Despite this long process, both its optical and microphysical properties remain practically invariant.

Capítulo 1. Introducción, objetivos y estructura de la tesis

1.1. *El aerosol atmosférico*

Los aerosoles atmosféricos, por definición, son un conjunto de partículas sólidas o líquidas en suspensión en un medio gaseoso, que se mantienen el tiempo suficiente como para permitir su observación y medida (Willeke y Baron, 1993). Independientemente de su origen, los aerosoles producen efectos radiativos directos e indirectos en el balance del sistema Tierra-atmósfera (Myhre et al., 2013). Los efectos directos se deben principalmente a la absorción y dispersión producida por su interacción con la radiación solar y terrestre, y los efectos indirectos, que actúan como núcleos de condensación en el proceso de formación de nubes, influyen en sus propiedades microfísicas y ópticas (como el albedo) y por tanto en la precipitación (Haywood and Boucher, 2000; Lohmann et al., 2010; Boucher et al., 2013). El efecto producido podrá ser de calentamiento o enfriamiento de la superficie terrestre y dependerá simultáneamente de varios factores como la distribución de tamaño de las partículas, la absorción, el albedo de la superficie y la altura a la que se encuentren en la atmósfera, entre otros.

Hay una gran diversidad de fuentes de emisión de partículas o aerosoles. Según su origen, los aerosoles se pueden clasificar en aquellos de origen natural (polvo desértico, cenizas volcánicas, sal marina, hielo ártico, etc.) y de origen antropogénico (quema de combustibles fósiles, emisiones industriales, etc.).

Según su tamaño, podemos clasificar en primera aproximación los aerosoles en partículas finas o partículas gruesas. El tamaño de las partículas puede variar desde unos pocos nanómetros hasta varias micras. Las partículas más pequeñas, principalmente con origen antropogénico, representan un mayor número en la atmósfera. El estudio de este tipo de partículas es de gran interés, tanto en su procedencia, como en sus efectos. En particular en la salud humana, dado que, debido a su principal composición (sulfatos, nitratos, carbón etc.) y a su tamaño, pueden provocar un fuerte impacto negativo (e. g. Pope, 2000; Pérez et al., 2012). Por el contrario, las partículas gruesas, de origen natural, son las que mayor masa aportan. Una de las principales fuentes de partículas gruesas son los desiertos, cuyo polvo mineral es uno de los tipos de aerosol que juega uno de los papeles más importantes en la atmósfera. El polvo mineral absorbe y dispersa la radiación terrestre y solar y, por lo tanto, afecta el balance radiativo de la Tierra (Choobari et al., 2014). El polvo mineral también interfiere en los procesos microfísicos de las nubes que a su vez afectan las propiedades de radiación y el ciclo hidrológico (Karydis et al., 2017; DeMott et al., 2010). El polvo mineral también sirve como una fuente importante de nutrientes para los ecosistemas oceánicos y terrestres y de esta manera la deposición de polvo puede afectar el ciclo del carbono (Jiskels et al., 2005).

Todos estos procesos presentan un impacto significativo en el clima. Dada la importancia del polvo mineral, es necesario comprender los factores que afectan la actividad de las fuentes de polvo mineral, las propiedades que éste presenta y cómo cambian durante su transporte y deposición. En el hemisferio norte, África es una de las fuentes de polvo mineral más grande del mundo, se estima que produce más de la mitad del total mundial (Huneeus et al., 2011) y se transporta tanto por la cuenca Mediterránea, como hacia Europa, así como hacia el oeste, sobre el Atlántico, hacia el continente americano.

Los aerosoles y sus efectos sobre el clima han sido intensamente estudiados en las últimas décadas, por ser este uno de los componentes atmosféricos que mayor incertidumbre introduce en los modelos de cambio climático. Existen ya series de datos largas tanto desde redes en tierra como desde sensores satelitales que nos permiten analizar su comportamiento a largo plazo. En este contexto, se hace necesario desarrollar metodologías de detección automática de eventos de alta turbiedad, así como el estudio a lo largo de periodos prolongados de tiempo para la realización de climatologías de aerosoles y el estudio detallado de su transporte a lo largo del planeta. A lo largo de este trabajo se detallará una metodología de detección de eventos de alta turbiedad, así como el estudio del aerosol de origen desértico (cuya fuente es el desierto del Sahara, en África) y su transporte, a lo largo de 20 años, hacia la cuenca del mar Caribe.

1.2. *Objetivos*

El objetivo principal de esta tesis doctoral es la detección de eventos de polvo de origen desértico, así como el estudio de su transporte y sus propiedades principales.

Este objetivo general da lugar a los siguientes objetivos específicos que se van a desarrollar en los artículos que componen esta tesis.

- I. Proporcionar una comparación exhaustiva de tres metodologías diferentes para la identificación de episodios atmosféricos de alta turbiedad. Un método que combina información del aerosol en columna y en superficie; otro basado en datos exclusivamente de superficie; y un tercer método automático que se basa en información del aerosol en columna.
- II. Analizar las observaciones de fotómetro solar realizadas durante la campaña de medidas SALTRACE (Saharan Aerosol Long-range Transport and Aerosol-Cloud-Interaction Experiment), en Barbados, y relacionarlas con medidas de otros instrumentos utilizados para, de esta manera, identificar los episodios de alta turbiedad y poder evaluar las propiedades del aerosol Sahariano en el Caribe.
- III. Analizar los cambios en las propiedades ópticas y microfísicas del polvo Sahariano debido al transporte a través del océano Atlántico, comparando los

datos obtenidos en África occidental y estaciones del Caribe utilizando datos obtenidos mediante fotometría solar.

En la Tabla 1 se recogen las principales tareas desarrolladas en la tesis doctoral indicando el artículo en el que han sido desarrolladas.

Tabla 1. Tareas desarrolladas y artículo correspondiente.

TAREAS	ARTICULO
Creación de método automático de detección de eventos de alta turbiedad de origen desértico, antrópico o mezclas.	1
Comparación del método mencionado con otras metodologías diferentes para su validación.	1
Identificación de eventos de polvo desértico durante la campaña de medidas SALTRACE (Barbados) por el fotómetro solar CIMEL 318.	2
Análisis conjunto de medidas del fotómetro solar CIMEL 318 con las obtenidas por diferentes instrumentos y técnicas de medida.	2
Análisis de las propiedades microfísicas y radiativas correspondientes al aerosol desértico observado.	2
Determinación de la variabilidad estacional de carga de aerosoles en la zona de África occidental y el Caribe.	3
Creación una “base de datos” de las conexiones de ambas zonas mediante retrotrayectorias de masas de aire.	3
Análisis climatológico de las propiedades microfísicas y radiativas obtenidas de las medidas de fotómetro solar correspondientes al aerosol desértico observado a ambos lados del Atlántico.	3
Rastreo de la misma pluma de aerosol, comparando las medidas realizadas en la zona oeste de África y la cuenca del Caribe con el fin de cuantificar el impacto del transporte sobre las propiedades del aerosol desértico.	3

1.3. Estructura de la Tesis

El trabajo de investigación presentado en esta memoria para optar al título de Doctor en Física por la Universidad de Valladolid se ha realizado mediante la modalidad “Compendio de Artículos”. Los artículos que componen la tesis han sido publicados en revistas científicas pertenecientes al primer cuartil dentro de su categoría. De este modo, los resultados de la investigación realizada en torno a los objetivos anteriormente

mencionados se dividirán a en tres capítulos, y cada capítulo corresponderá a uno de los artículos. Las referencias bibliográficas de los tres artículos que componen esta tesis doctoral son las siguientes:

- Artículo 1 (A1): D. Mateos, V. E. Cachorro, C. Velasco-Merino, N. T. O'Neill, M.A. Burgos, R. Gonzalez, C. Toledano, M. Herreras, A. Calle, A.M. de Frutos.: Comparison of three different methodologies for the identification of high atmospheric turbidity episodes, *Atmospheric Research.*, 237, 104835. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2019.104835>, 2020. Factor de Impacto 4.676, ranking 13/93 (Meteorological and Atmospheric Sciences, Fuente JCR 2019).
- Artículo 2 (A2): Toledano, C., Torres, B., Velasco-Merino, C., Althausen, D., Groß, S., Wiegner, M., Weinzierl, B., Gasteiger, J., Ansmann, A., González, R., Mateos, D., Farrel, D., Müller, T., Haarig, M., and Cachorro, V. E.: Sun photometer retrievals of Saharan dust properties over Barbados during SALTRACE, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 14571–14583, <https://doi.org/10.5194/acp-19-14571-2019>, 2019. Factor de Impacto 5.414, ranking 9/93 (Meteorology & Atmospheric Sciences, Fuente JCR 2019).
- Artículo 3 (A3): Velasco-Merino, C., Mateos, D., Toledano, C., Prospero, J. M., Molinie, J., Euphrasie-Clotilde, L., González, R., Cachorro, V. E., Calle, A., and de Frutos, A. M.: Impact of long-range transport over the Atlantic Ocean on Saharan dust optical and microphysical properties based on AERONET data, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 9411–9424, <https://doi.org/10.5194/acp-18-9411-2018>, 2018. Factor de Impacto 5.668, ranking 8/86 (Meteorology & Atmospheric Sciences, Fuente JCR 2018).

En la presente memoria se pretende exponer de forma clara y precisa la coherencia y cohesión temática de la investigación subyacente a las publicaciones. Es por ello, que se ha considerado que la estructura que relaciona mejor la temática de las publicaciones, así como la relevancia de su aportación conjunta es la siguiente:

Este primer capítulo sirve tanto de introducción global al tema de estudio, como de presentación de los diferentes objetivos marcados y tareas realizadas a lo largo de esta tesis doctoral. En el capítulo 2 pasaremos a realizar una descripción más en profundidad sobre los diferentes tipos de aerosol, así como sus principales propiedades, las magnitudes utilizadas para el estudio y caracterización del aerosol, y se hará especial énfasis en el aerosol de origen desértico.

A lo largo del Capítulo 3 se dará una visión detallada de la metodología que se ha seguido a lo largo de toda la tesis, explicando, de esta manera la red de medidas de aerosoles AERONET (AErosol RObotic NETwork, Holben et al., 1998) y sus productos, así como la principal instrumentación utilizada la obtención de los datos de máxima calidad. Del mismo modo serán descritos, aunque con menor detalle, el modelo HYSPLIT (Hybrid

Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory Model) de análisis de masas de aire, así como los diferentes tipos de medidas complementarias para la mejora del estudio de aerosoles.

El capítulo 4 es el primer capítulo de resultados e incluye al primer artículo completo publicado en su versión en inglés presentado en esta tesis. En este capítulo se presenta la creación y desarrollo de un método de detección de eventos de alta turbiedad de origen desértico, antrópico y mezclas. Posteriormente se compara dicho método automático con diferentes métodos publicados para realizar una validación del mismo y proponer los diferentes beneficios de su uso para la detección de eventos de alta turbiedad, sobre todo en periodos largos de tiempo o cuando se dispone de un elevado número de estaciones para su análisis.

El capítulo 5 recoge el segundo artículo presentado en esta tesis, que trata sobre el estudio exhaustivo de los datos obtenidos por un fotómetro solar durante la campaña de medidas SALTRACE (Barbados) y su relación con medidas de otros instrumentos utilizados para, de esta manera, poder evaluar las propiedades ópticas y microfísicas del aerosol Sahariano en el caribe.

En el capítulo 6 se cierra la sección de resultados incluyendo el tercer y último de los tres artículos utilizados para la presentación de esta tesis doctoral. En éste se procede a determinar la variabilidad estacional de carga de aerosoles en la zona de África occidental y del Caribe. Posteriormente se presenta un análisis de las propiedades microfísicas y radiativas obtenidas por las medidas de un fotómetro solar correspondientes al aerosol desértico observado a ambos lados del Atlántico, utilizando una base de datos (construida para este estudio) de conexiones de masas de aire entre los diferentes puntos de observación. Finalmente se realiza una comparación de dichas propiedades a ambos lados del Atlántico con el fin de comprobar el posible cambio en las propiedades del aerosol que sale de la zona del oeste de África y que consigue llegar a la cuenca del Caribe.

Por último el capítulo 7 recoge las diferentes conclusiones que se han obtenido a lo largo de todo el trabajo, así como la sugerencia de líneas futuras de investigación sobre este tema.

Capítulo 2. Propiedades y tipos de aerosol atmosférico

A lo largo de este capítulo se procederá a definir las diferentes propiedades de los aerosoles atmosféricos que serán utilizadas en esta tesis doctoral. Primero se describirá el espesor óptico de aerosoles (AOD, de su nombre en inglés *aerosol optical depth*) y el exponente de Ångström (AE, de su nombre en inglés *Ångström exponent*), que son las propiedades fundamentales utilizadas para el estudio de los aerosoles a lo largo de esta tesis doctoral. Posteriormente se definirán el resto de propiedades de los aerosoles clasificadas en propiedades ópticas (*single scattering* albedo, parámetro de asimetría e índice de refracción) y propiedades microfísicas (distribución de tamaños, fracción de partículas esféricas o esfericidad, radio efectivo y fracción del modo fino). Finalmente se hará una breve descripción de los diferentes tipos de aerosol, haciendo especial énfasis en el aerosol de origen desértico, el cual es el principal foco de estudio de esta tesis, apoyando estas medidas experimentales con los modelos de aerosoles y la climatología de aerosoles de la red AERONET, descritos más adelante.

2.1. Espesor Óptico de Aerosoles (AOD)

El espesor óptico de aerosoles (AOD, por sus siglas en inglés *Aerosol Optical Depth*) es una de las magnitudes fundamentales para el análisis y clasificación de aerosoles. Se trata de un identificador de la turbiedad (cantidad de aerosol) de la columna atmosférica. Se basa en la comparación entre el espectro de la radiación solar directa en la superficie de la tierra y el espectro solar extraterrestre (ver, Figura 2.1). La diferencia entre ambos espectros es el espesor óptico total de la atmósfera, que se debe a la atenuación producida por la absorción y el scattering de moléculas y aerosoles (*scattering* Rayleigh y *scattering* Mie), y a la producida por las absorciones selectivas debidas a diferentes componentes atmosféricos como el ozono, oxígeno, vapor de agua, etc.

De esta manera, si suponemos una atmósfera plano-paralela monocapa, la atenuación se puede explicar mediante la ley de Beer-Bouguer-Lambert:

$$I_{\lambda} = I_{0\lambda} e^{-\tau_{\lambda} m} \quad (2.1)$$

Siendo entonces I_{λ} la irradiancia medida a nivel del suelo para una longitud de onda λ , $I_{0\lambda}$ es la irradiancia extraterrestre, τ_{λ} es el espesor óptico total de la atmósfera (espesor de toda la columna atmosférica), y m es la masa óptica, definida como la

relación entre el camino óptico en la dirección de observación y la vertical. Entonces, el espesor óptico total de la columna atmosférica, el cual engloba el espesor óptico de aerosoles, el de las moléculas (scattering de Rayleigh) y las absorciones por los diferentes gases, se puede definir mediante la expresión:

$$\tau_{\lambda} = \frac{1}{m} \ln \left(\frac{I_{\lambda}}{I_{0\lambda}} \right) \quad (2.2)$$

Por lo que, para obtener el espesor óptico de aerosoles (τ_a), tenemos que restar la contribución al espesor total que se debe al *scattering* Rayleigh (τ_R) y a las absorciones por parte de diferentes gases atmosféricos (τ_g):

$$\tau_a = \tau - \tau_R - \tau_g \quad (2.3)$$

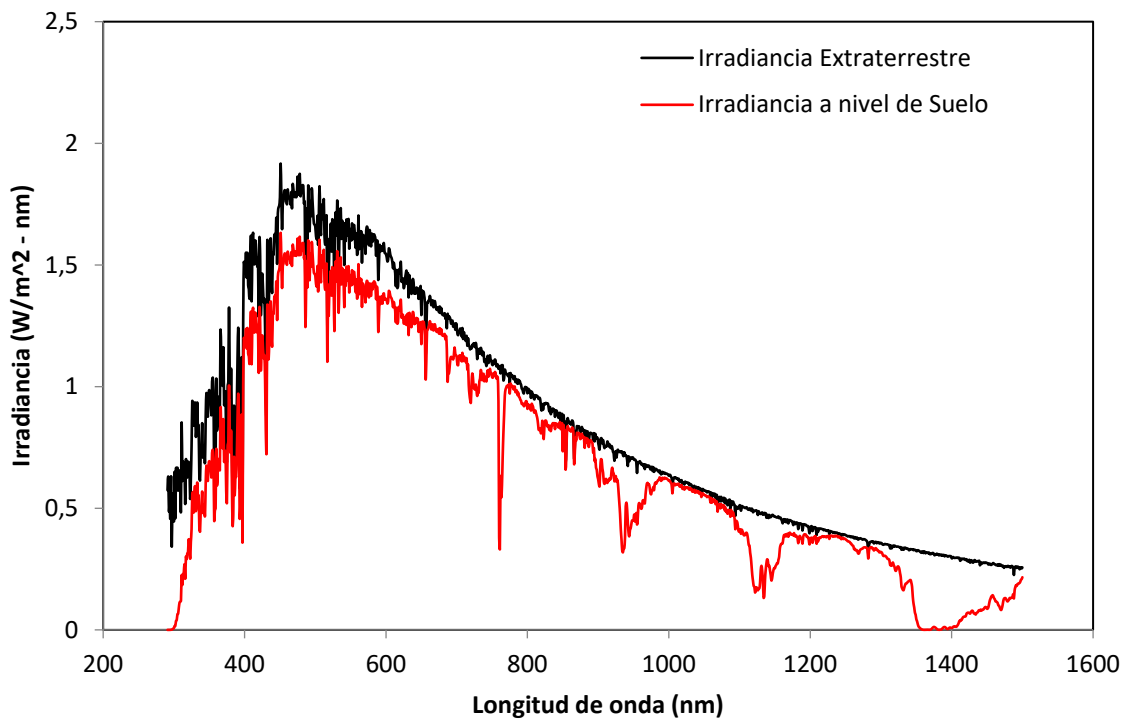


Fig.2.1.- Irradiancia solar extraterrestre y al nivel del suelo. Espectro a nivel de suelo simulado con el modelo LibRadtran usando los siguientes parámetros: $\tau_a(1020\text{nm}) = 0.03$, aerosol continental/urbano, ángulo cenital solar = 30° , $O_3 = 300$ DU, $H_2O = 7.58\text{mm}$, albedo = 0.2.

El espesor óptico de aerosoles es uno de los principales indicadores del contenido vertical de la cantidad de aerosoles en toda la columna atmosférica, y se puede medir con gran precisión desde redes en tierra, así como desde sensores satelitales, lógicamente con menor precisión o resolución temporal en estos últimos, pero con cobertura espacial global. Es por ello que se trata de una de las magnitudes fundamentales en el estudio de aerosoles atmosféricos en columna. Otra razón importante es que del AOD se puede extraer el parámetro alfa de Ångström o exponente de Ångström (el cual veremos a continuación), el cual nos proporciona información acerca del tamaño predominante de las partículas que se encuentran en la columna atmosférica.

2.2. El exponente de Ångström (AE)

La dependencia espectral del *scattering* de Mie está relacionada con el tamaño de las partículas, en concreto por la relación entre el tamaño de la partícula y la longitud de onda de la radiación incidente. Es por esto que, el análisis espectral del espesor óptico de aerosoles es esencial para el estudio y clasificación de aerosoles mediante métodos ópticos.

Para obtener la dependencia espectral del espesor óptico se utiliza otro parámetro llamado Exponente de Ångström debido a su autor (Ångström, 1929; 1964), y viene dado por la expresión:

$$\tau_{\lambda} = \beta \lambda^{-\alpha} \quad (2.3)$$

Dónde λ es la longitud de onda (en μm), α el parámetro o exponente de Ångström (relacionado con el tamaño predominante del aerosol) y β coincide con el espesor óptico correspondiente a $1\mu\text{m}$. Los valores del exponente de Ångström pueden variar de 0 (incluso ligeramente negativos, depende del rango espectral que se esté considerando) a 4, siendo los más bajos los correspondientes a las partículas más gruesas, y los valores más altos los correspondientes a las partículas más finas.

En la práctica se utilizan valores de AOD medidos a diferentes longitudes de onda para obtener este parámetro. Esto es debido a que la expresión (2.3) solo se cumple de manera aproximada. Según el rango en que calculemos α , el resultado será distinto. De esta manera tendríamos un problema a la hora de comparar diferentes estudios.

En primer lugar podemos calcular el valor de α a partir de AOD en pares de longitudes de onda, que denotaremos como $\alpha(\lambda_1/\lambda_2)$. Para ello tomaremos logaritmos en la expresión de Ångström:

$$\ln(\tau_{\alpha}) = \ln(\beta) - \alpha \ln(\lambda) \quad (2.4)$$

Esta expresión se verificará para cada longitud de onda, por lo que si disponemos del AOD en 2 longitudes de onda sólo tenemos que restar ambas expresiones para encontrar el valor del exponente alfa:

$$\ln(\tau_{\lambda_1}) - \ln(\tau_{\lambda_2}) = -\alpha(\ln(\lambda_1) - \ln(\lambda_2)) \quad (2.5)$$

Sin embargo, esta forma de calcular el exponente de Ångström es muy sensible al error del AOD. Por ello es recomendable emplear al menos tres valores de AOD espectral y obtener α mediante un ajuste lineal siguiendo la expresión 2.4.

2.3. *Modo fino y grueso del aerosol atmosférico*

Para separar la contribución del modo grueso y el modo fino de la distribución de tamaños del aerosol, se usa el algoritmo de deconvolución espectral (SDA). Este algoritmo, desarrollado por O'Neil et al. (2001, 2003) y utilizado por la red AERONET, emplea como entrada cinco valores espectrales de AOD en el rango de 380-870nm y las salidas son una variedad de propiedades del aerosol en las que se separan las propiedades de los modos fino y grueso. Esos productos se evalúan a una longitud de onda de referencia de 500nm e incluyen: AOD total a 500nm (denominado AOD₅₀₀), AOD de modo fino (AOD_F) y AOD de modo grueso (AOD_C), fracción de modo fino ($\eta = \text{AOD}_F / \text{AOD}$), derivada espectral de AOD (α , según O'Neil et al., 2001, 2003) y derivada espectral de α , denotado como α' . En este trabajo, debemos notar el significado diferente de α y AE, ambos se definen en la literatura como el exponente de Ångström, pero α se define como la derivada del AOD(λ) en una longitud de onda específica (500nm en el algoritmo SDA) y AE está relacionado con un intervalo de longitud de onda espectral dada (O'Neill et al., 2003; Mateos et al., 2020).

2.4. *Propiedades Microfísicas*

Vamos a denominar propiedades microfísicas a aquellas propiedades de los aerosoles asociadas la forma y tamaño de los mismos. A partir de los valores de AOD, y usando la teoría de Mie se pueden usar diferentes algoritmos de inversión para obtener diferentes propiedades microfísicas y ópticas, así como la distribución de tamaños, de los aerosoles. Los algoritmos más usados, los cuales utilizan valores de radiancia del suelo y de espesor óptico conjuntamente son los de Nakajima et al. (1983) y Dubovik and King (2000).

Las propiedades descritas a continuación, han sido obtenidas a partir del algoritmo de inversión, versión 2, de AERONET (Dubovik et al., 2006). Este algoritmo invierte tanto las medidas espectrales de espesor óptico como la distribución angular de la radiancia del cielo, dando cuenta adecuadamente de los efectos del scattering múltiple en un

amplio rango de ángulos de scattering. Este modelo asume la forma del aerosol como una mezcla de esferas y esferoides, el cual mencionaremos más adelante, cuando mencionemos el parámetro de esfericidad. Recientemente se acaba de actualizar el algoritmo de inversión de AERONET, versión 3 (Sinyuk et al., 2020).

De entre todas las propiedades que ofrecen estos algoritmos, nos vamos a centrar en la distribución de tamaños (VPSD, *volumen particle size distribution*), esfericidad (SF) y radio efectivo (ER, *effective radius*).

2.4.1. Distribución de tamaños (VPSD)

Los aerosoles atmosféricos tienen un amplio rango de tamaños, desde unas micras hasta las milésimas (ver, Figura 2.2). Por lo que podemos distinguir el modo fino (inferior a $0.5\mu\text{m}$), y modo grueso (desde $0.5\mu\text{m}$). Aunque clásicamente se ha dividido el modo fino en el modo ultrafino (formado por el de nucleación y el de Aitken), y el modo de acumulación (entre 0.1 y $1-2\mu\text{m}$). Ambos modos se originan y se transforman, en general, de manera independiente. Las partículas de sendos modos son eliminadas de la atmósfera de manera independiente, su composición química es diferente, tienen diferentes propiedades ópticas y presentan diferencias significativas en su patrón de deposición. Es por esto que la separación entre partículas finas y gruesas es esencial en el estudio de los aerosoles (Prats, 2009).

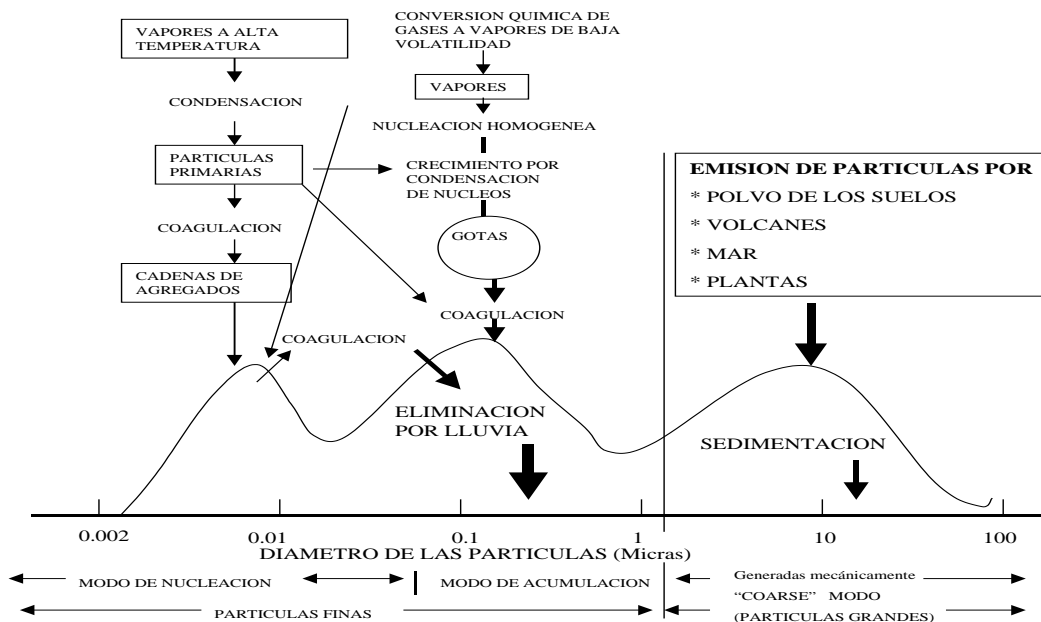


Fig.2.2.- Forma típica de la función de distribución de tamaños de los aerosoles, con los tres modos y los mecanismos de formación y eliminación en la atmósfera (tomada de Toledano, 2004).

Para describir de manera más precisa, y de forma matemática, esta distribución de tamaños de los aerosoles es necesario definir la llamada función de distribución de tamaños $n(r) = dN/dr$, siendo N el número de partículas por unidad de superficie para el caso de las medidas en columna (unidad de volumen por la altura de la columna), y r el radio de las mismas. A lo largo de esta tesis doctoral, cuando nos refiramos a la distribución de tamaños nos referiremos a la distribución de tamaños de las partículas en volumen (VPSD, volume particle size distribution) y se da en $\mu m^3/\mu m^2$. Es decir, indica la concentración de partículas de un determinado intervalo de tamaño por unidad de volumen, dado que no se puede discretizar este valor para cada radio de cada conjunto de partículas. El algoritmo de inversión nos va a proporcionar una distribución en la que podemos observar, normalmente, dos modos o campanas. Una corresponde al modo fino, o concentración en volumen de partículas finas, cuyo máximo de concentración en volumen corresponde al valor de la mediana del radio de las partículas en ese modo. El otro corresponde al modo grueso, o concentración en volumen de partículas gruesas, cuyo máximo de concentración en volumen corresponde al valor de la mediana del radio de las partículas. A lo largo de este trabajo, tomaremos como modo fino el rango entre 0.05-1 μm de radio, y como modo grueso el intervalo 1-10 μm aproximadamente. De esta propiedad se puede obtener la concentración en volumen del modo fino y grueso (VolCon) y el radio efectivo (ver 2.4.3).

2.4.2. Esfericidad (SF)

A lo largo de esta tesis doctoral, cuando se hable de esta propiedad, nos referiremos a la fracción de partículas esféricas, en tanto por uno, que hay en el total de las partículas en toda la columna atmosférica.

Originalmente, los modelos de inversión de aerosoles tomaban como aproximación el modelo de partículas esféricas. Pero, como se puede encontrar en la literatura, se sabe que los diferentes tipos de aerosol pueden llegar a tener formas totalmente irregulares (como por ejemplo el polvo desértico) y se hizo necesario modificar los algoritmos de inversión. El algoritmo de inversión (Dubovik et al., 2000) es muy sensible a la no esfericidad de las partículas. Por esta razón, se usa el modelo de esferoides (Dubovik et al., 2006), donde se tomarán las partículas no esféricas como partículas con un radio equivalente al de una esfera del mismo volumen (de manera que una esfera es un esferoide con una razón entre ejes $\epsilon=1$). Durante el proceso de inversión, el algoritmo ajusta las propiedades observadas mediante una mezcla de aerosol formada por esferas y esferoides. La proporción final entre ambos componentes queda determinada en el procedimiento mismo de inversión (menor diferencia entre observaciones y modelo).

2.4.3. Radio Efectivo (ER)

El radio efectivo es el radio equivalente o promedio de las partículas que están presentes en la columna atmosférica. Se obtiene a partir de la distribución de tamaños de las partículas, y se puede definir, según Hansen and Travis (1974), como:

$$R_{ef} = \frac{\int_{r_1}^{r_2} r \pi r^2 \frac{dN(r)}{dr} dr}{\int_{r_1}^{r_2} \pi r^2 \frac{dN(r)}{dr} dr} = \frac{1}{G} \int_{r_1}^{r_2} r \pi r^2 \frac{dN(r)}{dr} dr \quad (2.6)$$

Donde G es la sección eficaz geométrica por unidad de volumen, N el número de partículas y r el radio de las mismas. Este parámetro es importante debido a que las propiedades del scattering simple de la distribución de tamaños están más íntimamente relacionadas con el radio efectivo

Dado que el radio efectivo se obtiene del parámetro distribución de tamaños (y como acabamos de ver es el radio promedio de todas las partículas), mencionado anteriormente, podremos obtener de manera separada el radio efectivo correspondiente al modo fino, así como el radio efectivo de las partículas correspondientes al modo grueso y el radio efectivo del total de las partículas presentes en la columna atmosférica.

2.5. Propiedades Radiativas y Ópticas

Vamos a definir como propiedades radiativas y ópticas, a aquellas propiedades de los aerosoles atmosféricos asociadas a su interacción con la radiación electromagnética solar. Están relacionadas, principalmente, con su absorción o scattering. De entre todas las propiedades, vamos a centrarnos en el albedo de dispersión simple o *single scattering albedo* (SSA), parámetro de asimetría (g) e índice de refracción (parte real n, y parte imaginaria k).

2.5.1. Albedo de dispersión simple (SSA, ω_0)

El albedo de dispersión simple se define como la relación entre la luz dispersada con respecto a la luz total extinguida al interactuar con las partículas de los aerosoles:

$$\omega_0(\lambda) = \frac{\sigma_{sca}}{\sigma_{ext}} = 1 - \frac{\sigma_{abs}}{\sigma_{ext}} \leq 1 \quad (2.7)$$

Esta propiedad es muy utilizada en la teoría de transferencia radiativa y se interpreta como la probabilidad que un fotón interactuando con la partícula sea dispersado más que absorbido.

Cuanto mayor es el valor de este parámetro menor es la absorción producida por los aerosoles, es decir, para un aerosol completamente absorbente el valor del SSA sería cero. Por el contrario, si $\omega_0 = 1$ no se producirían pérdidas radiativas por absorción. Este parámetro tiene una fuerte dependencia con la longitud de onda de la radiación incidente. Los valores típicos están comprendidos entre 0.7 y 1 y dicho valor crece o decrece con la longitud de onda dependiendo del tipo de aerosol (siendo, por ejemplo 0.93 en 440nm hasta 0.99 en 1020nm para el aerosol desértico, o 0.88 en 440nm hasta 0.78 en 1020nm para el aerosol de tipo quema de biomasa, Dubovik et al., 2002). Esta magnitud no es nada fácil de medir debido a que la absorción de los aerosoles es en general pequeña en comparación con la dispersión o scattering que producen. No es suficiente para obtener este parámetro en un algoritmo de inversión introducir solo el espesor óptico y el exponente de Ångström, sino que tenemos que proporcionar más información adicional acerca del aerosol que estamos observando en la columna (radiación dispersada), así como tener muy claro el modelo de esferoides que se aplica al cálculo de inversiones, etc.

2.5.2. Parámetro de Asimetría (g)

Esta propiedad da una estimación de la direccionalidad de la función de fase de la radiación incidente. Siendo positiva si dispersa más luz hacia adelante “forward scattering” ($\Theta < 90^\circ$) y negativo si es más dispersivo hacia atrás ó “backscattering” ($90^\circ < \Theta < 180^\circ$) (ver, Figura 2.3). Los valores de este parámetro están comprendidos entre -1 y 1, siendo $g(\lambda) = -1$ totalmente retro-dispersivo, $g(\lambda) = 1$ dispersión hacia adelante y $g(\lambda) = 0$ dispersión isótropa en todas direcciones:

$$g(\lambda) = \frac{\int_0^\pi \cos(\Theta) P(\lambda, \Theta) d\cos(\Theta)}{\int_0^\pi P(\lambda, \Theta) d\cos(\Theta)} \quad (2.8)$$

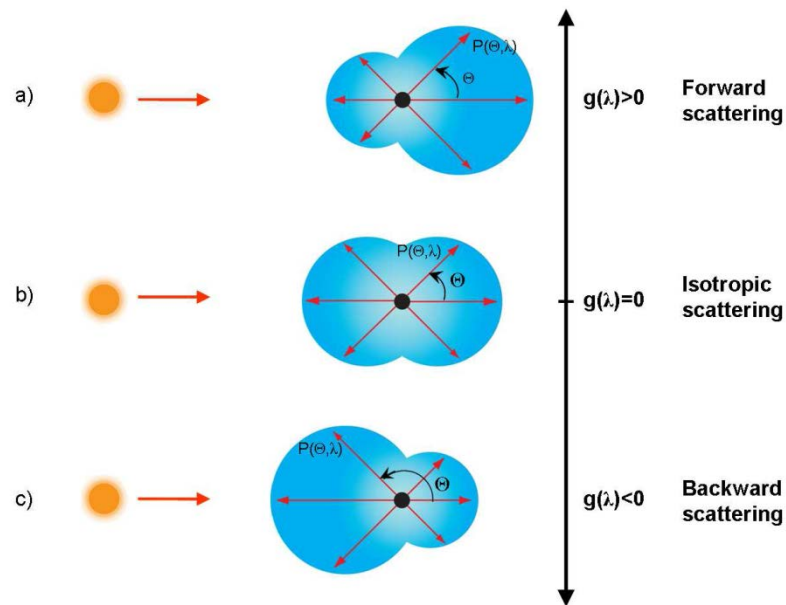


Fig.2.3.- Parámetro de asimetría, $g(\lambda)$, como indicador de la distribución de la función de fase de la radiación incidente. En ella se muestran diferentes casos en los que la radiación se dispersa a) hacia adelante, b) de manera isotrópica (scattering de Rayleigh) y c) hacia atrás (scattering de Mie), Obtenida de Guirado (2015).

2.5.3. Índice de Refracción

Al igual que sucede cuando se produce un cambio en el medio físico en el camino óptico de un haz de luz, la presencia de aerosoles en la atmósfera produce un cambio de dirección de la radiación solar incidente. Este parámetro resulta muy útil para la caracterización de los tipos de aerosoles que nos podemos encontrar en la atmósfera. Se define de la siguiente manera:

$$n_r = n(\lambda) + i k(\lambda) \quad (2.9)$$

- Índice de refracción, parte real (n): La parte real del índice de refracción corresponde a la desviación que sufre la radiación solar incidente debida a la dispersión producida por los aerosoles atmosféricos.

Este parámetro está fuertemente ligado a la composición química de los aerosoles que condiciona, decisivamente, la interacción de la radiación con los aerosoles. Desviando así, de una u otra manera la radiación incidente.

- Índice de refracción, parte imaginaria (k): La parte imaginaria del índice de refracción corresponde a la extinción que sufre la radiación solar incidente debida a la absorción de la misma por los aerosoles atmosféricos. Es decir, cuanto más bajo es el valor de este parámetro menos absorción produce el aerosol, siendo cero para aerosoles

que no producen nada de absorción. También tiene una fuerte dependencia con la longitud de onda incidente.

2.6. Clasificación de los diferentes tipos de aerosol según su origen y propiedades.

A lo largo del siguiente apartado se va a realizar una breve descripción de los diferentes tipos de aerosoles atmosféricos según su composición y su origen.

Los parámetros básicos empleados en la caracterización de los aerosoles mediante medidas fotométricas son fundamentalmente el AOD y el exponente alfa de Ångström. Usaremos estas magnitudes para poder describir, en primera instancia y de manera gráfica, cada tipo de aerosol.

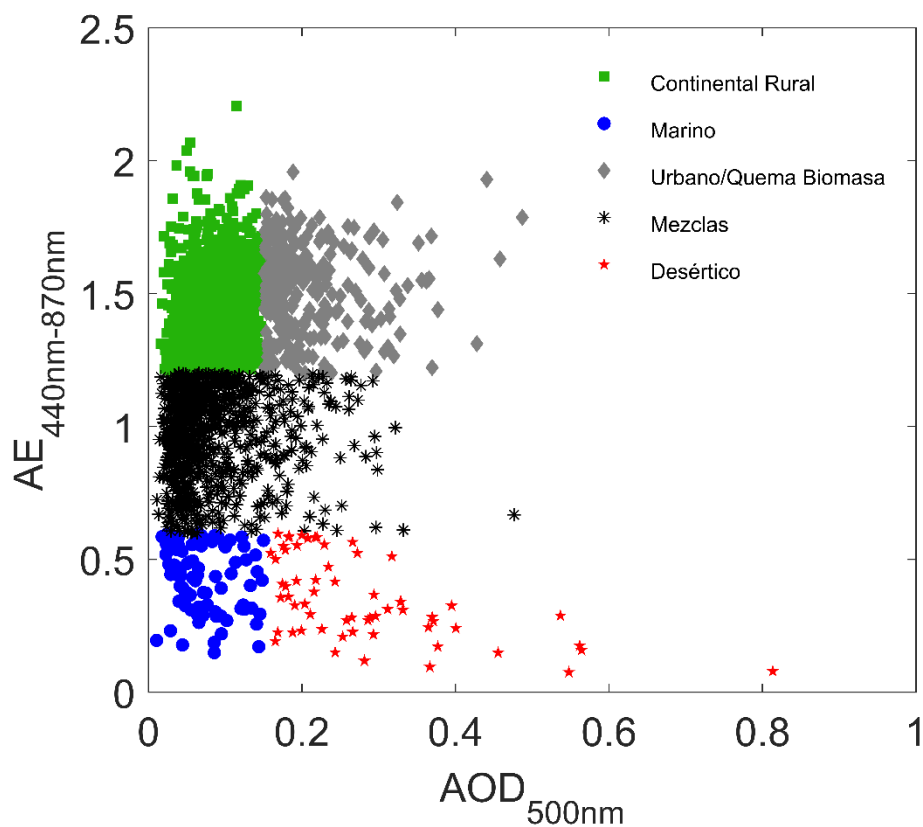


Fig.2.4.- Diagrama de dispersión AOD (500nm) frente al exponente de Ångström (440-870nm) en la estación de medidas de Palencia, datos promedio diarios durante el periodo 2003-2020.

Aerosol Marítimo

Puesto que dos tercios de la superficie del planeta están compuestos por agua, el aerosol de origen marítimo es uno de los más importantes a nivel climatológico. Está formado, en general, por sustancias solubles en agua (99.96%).

Para mostrar los valores típicos de AOD (500nm) y AE de este tipo de aerosol nos apoyaremos en el trabajo de Smirnov et al. (2002), el cual muestra los diagramas AOD/AE para distintas estaciones remotas de la red AERONET en los océanos Atlántico y Pacífico. Por lo general, el aerosol marítimo muestra valores bajos de AOD (por debajo de 0.15), y parámetro alfa de Angstrom por debajo de 0.5 aproximadamente, es decir, aerosol formado por partículas predominantemente gruesas.

Aerosol rural

Las zonas remotas o alejadas de grandes núcleos de población y/o actividad industrial presentan una baja concentración de aerosoles, siendo uno de los tipos de aerosol más frecuentes en la Península Ibérica (e.g., Mateos et al., 2014). Los valores típicos de aerosol rural (continental limpio) se muestran en la Figura 2.4 para la estación de Palencia (cuadrados verdes de la figura). Por lo general se observan valores del exponente de Ångström por encima de 1.2 y AOD menor de 0.15. Lo que indica una baja turbiedad producida por partículas, principalmente, finas.

Aerosol producido en grandes núcleos de población y quema de biomasa

Los aerosoles generados y emitidos a la atmósfera por la industria y los grandes núcleos de población son denominados de origen antropogénico. Esto puede tener mayor o menor impacto en función de la meteorología de cada región, puesto que el viento, la humedad, la renovación de las masas de aire o la orografía van a tener gran influencia a la hora de que aumente o disminuya de forma más o menos fuerte la concentración de estos aerosoles.

Los incendios forestales aportan enormes cantidades de aerosoles a la atmósfera. Las características de estos aerosoles dependen en tanto del tipo de combustible, así como de la edad del aerosol y la humedad. La combustión de biomasa inyecta un gran número de partículas finas, alcanzándose espesores ópticos muy altos y variables, pero con un parámetro alfa muy alto, puesto que la extinción debida a partículas finas tiene una fuerte dependencia espectral.

Estos dos grandes tipos de aerosoles ocupan la misma región en el diagrama AE-AOD (e.g., di Biagio et al., 2009; Mateos et al., 2014), pues ambos presentan condiciones de

mucha carga de aerosol con una predominancia clara de partículas finas, asociada a altos valores de AE. Por esto, la categoría Urbano-Quema de Biomasa mostrada en la Figura 2.4, presenta un espesor óptico mayor de 0.3 para una longitud de onda de 500nm y un exponente de Ångström mayor de 1.1.

Aerosol ártico

Tienen su origen en las plataformas continentales del norte de Europa y Asia, así como en los océanos que las circundan. Su composición consiste principalmente en partículas marinas y minerales. Este tipo de aerosol atmosférico toma valores muy bajos de AOD junto con valores altos de AE, lo que sugiere una atmósfera principalmente limpia de aerosoles. Aunque también es posible que se produzcan episodios de turbiedad media debida al transporte desde Europa, Canadá o Rusia, fenómeno más frecuente durante el invierno y primavera, y que se conoce como 'Arctic haze' (Quinn et al., 2007).

Para mostrar los valores típicos de este tipo de aerosol se han utilizado dos estaciones de medida. Por un lado tenemos la estación de medidas de Andenes en ALOMAR (*Arctic Lidar Observatory for Middle Atmosphere Research*, Andenes, Noruega, 69°N 16°E), situada en una isla frente a la costa atlántica noruega (a unos 300km por encima del círculo polar ártico), y para la cual se dispone de una serie de datos de más de 15 años, desde 2002. Por otro lado hemos usado también, para esta clasificación, los datos provenientes de la estación de Ny-Ålesund (79°N) en el archipiélago de las Svalbard, la cual posee datos, de manera continua, desde verano de 2017. Ambas series estaban restringidas a los períodos con luz solar, aunque en los últimos años se ha comenzado a medir en los períodos de oscuridad gracias a la capacidad de los nuevos fotómetros Cimel de medir irradiancia lunar.

Como veremos en la Figura 2.5, los diagramas AE-AOD presentan, de manera prevalente, valores muy bajos de AOD (aunque cada vez de empiezan a registrar cada vez más intrusiones durante el verano de aerosol proveniente de incendios o incluso de origen desértico) y valores muy altos de AE.

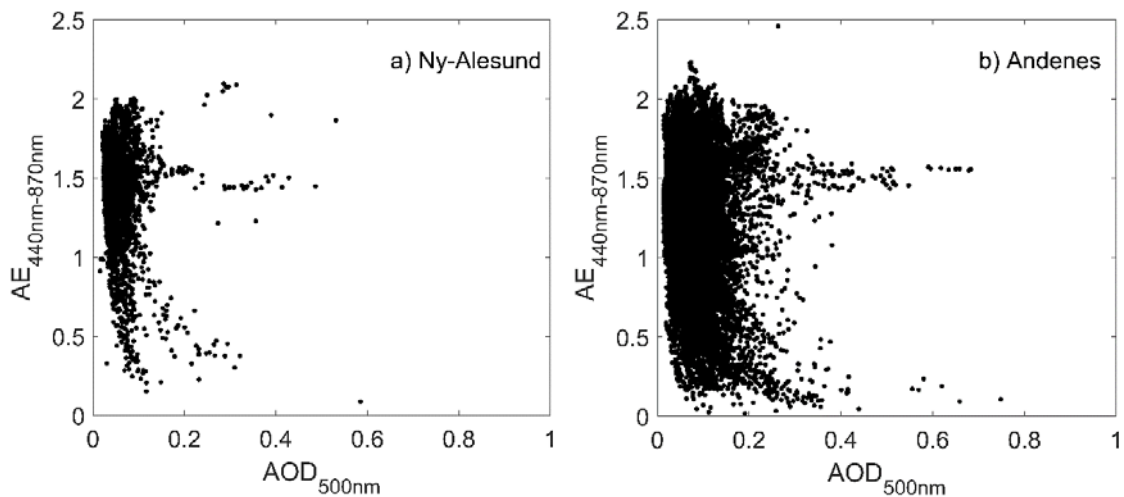


Fig.2.5.- Diagrama de AOD/AE a) Ny-Ålesund (Svalbard) y b) Andenes (Noruega). Datos de AERONET nivel 1.5.

Aerosol desértico

Este tipo de aerosol será motivo de estudio en los tres artículos que componen la tesis doctoral, por este motivo, en este apartado se va a profundizar en su descripción.

El aerosol de origen desértico o polvo mineral es uno de los tipos de aerosol más abundantes en la atmósfera y, como tal, desempeña un papel importante en el clima. Existen numerosas fuentes de emisión de polvo mineral. Las principales son las regiones áridas y semiáridas de África, Asia y Oriente Medio. Al absorber y dispersar tanto la luz solar como la radiación terrestre, afecta notablemente al balance radiativo de la Tierra. Es por esto que primero se van a describir las principales propiedades, como se ha hecho a lo largo del apartado con los distintos tipos de aerosol, y posteriormente se va a profundizar en el fenómeno de su transporte.

Como vimos en la figura 2.4, el aerosol desértico presenta en los diagramas AE-AOD valores con una turbiedad alta en general y pudiendo llegar a alcanzar valores de AOD por encima de 1, junto con un AE muy bajo, propio de la extinción de partículas gruesas. Se observa además una correlación negativa entre AOD y AE. La región por tanto que ocupan los aerosoles desérticos en el diagrama AE-AOD es la parte inferior derecha. En la distribución de tamaños predomina claramente el modo grueso, siendo dominante la concentración de partículas con un radio efectivo por encima de 2 μm .

En cuanto a sus propiedades ópticas, es importante destacar la absorción intensa en longitudes de onda corta, lo cual implica un aumento de SSA con la longitud de onda. Así mismo, el tamaño grande de las partículas implica valores altos y positivos del parámetro de asimetría. En cuanto al índice de refracción, la composición mineral implica valores altos de la parte real (>1.50) y a su vez valores altos de la parte imaginaria

(relacionados con la absorción) en longitudes de onda cortas. Por último, la forma de las partículas es en general no esférica, por lo que el parámetro de esfericidad que se obtiene en el procedimiento de inversión suele estar cercano a 0.

El aerosol de origen desértico no solo contribuye al clima debido a su gran aporte en la atmósfera. Este tipo de aerosol también sirve como una fuente importante de nutrientes a diferentes ecosistemas a lo largo de todo el planeta. De hecho, África es la fuente de polvo más grande del mundo, se estima que produce más de la mitad del total mundial (Huneeus et al., 2011).

Gran cantidad de polvo de origen africano se transporta hacia el oeste y cantidades significativas llegan a América del Sur (Prospero et al., 2014; Yu et al., 2014, 2015), el Mar Caribe (Prospero y Lamb, 2003) y el sur de los Estados Unidos (Bozlake et al., 2013) como podemos observar en la Figura 2.6. Este polvo africano (mayormente procedente del desierto del Sahara) suele transportarse dentro de la capa de mezcla de la atmósfera denominada Capa de Aire Sahariano (*SAL, Saharan Air Layer*) viajando, de este modo, a lo largo del océano atlántico y depositándose sobre el continente americano.

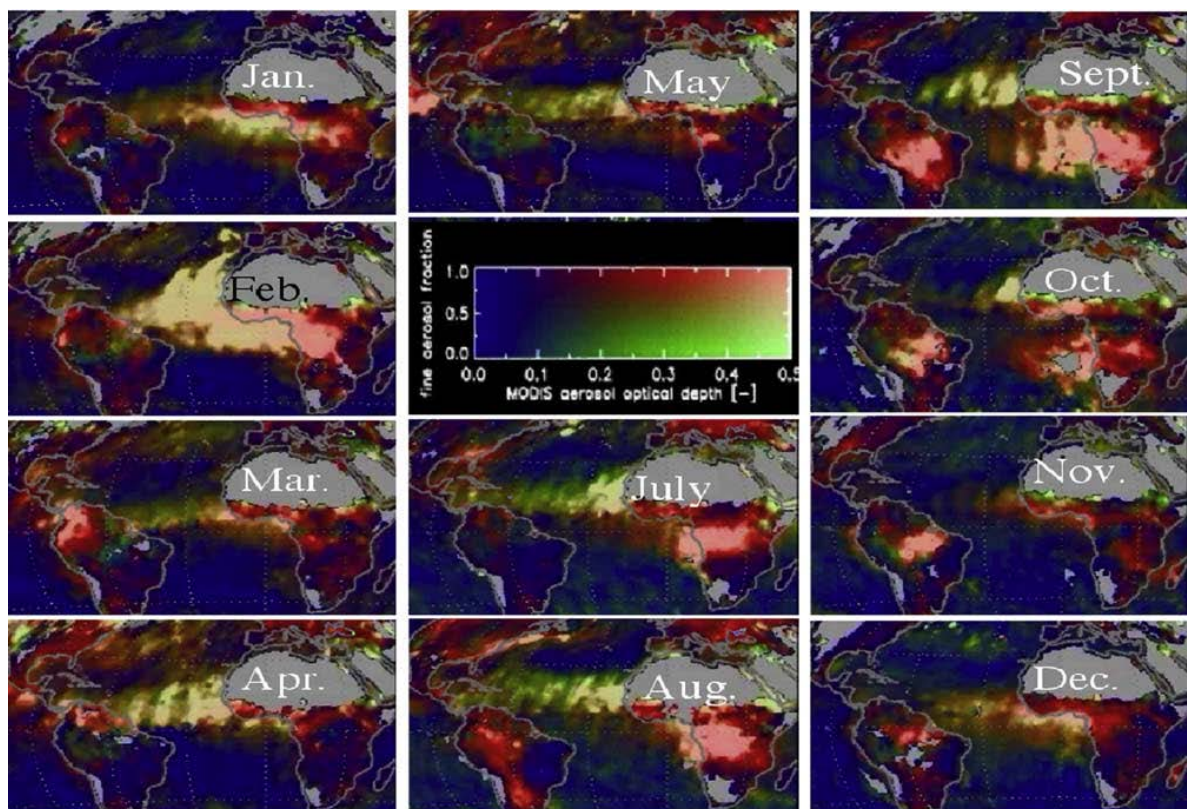


Fig.2.6.- Transporte a lo largo de un año (2001), mes a mes, de aerosol desértico procedente de África hacia la zona del Caribe tomada de Kaufman et al. (2005).

Como podemos observar en la Figura 2.7, la concentración de polvo recogida en la estación de medida colocada en la isla de Barbados es notable a lo largo de 48 años (1965-2013). Están destacadas las fechas de las campañas de medidas SAMUM-1, SAMUM-2 Y SALTRACE, las cuales son el objeto de motivación de esta tesis doctoral.

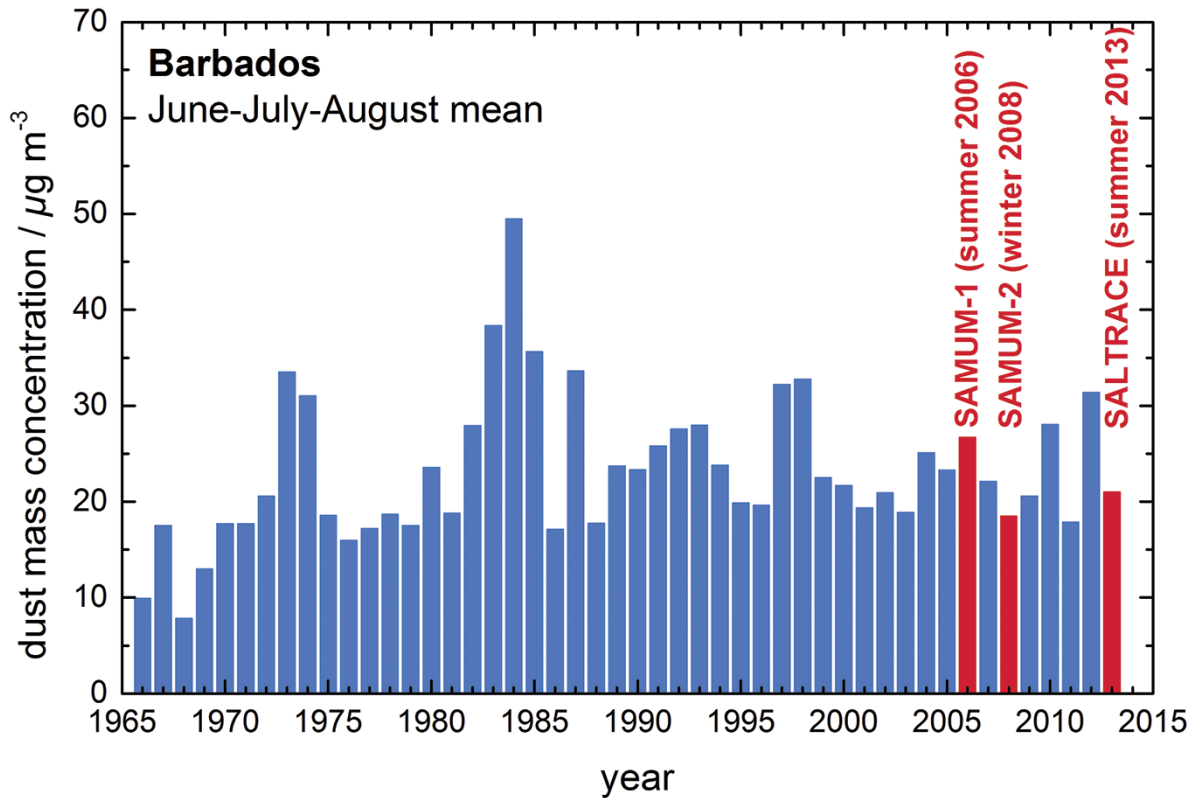


Fig.2.7.- Promedio de concentración de polvo desértico durante el verano (Junio-Agosto) a lo largo de 48 años (1965-2013) en la estación de medida de Barbados, haciendo énfasis en las campañas SAMUM-1, SAMUM-2 y SALTRACE, tomada de Weinzierl et al. (2017).

En el Capítulo 6 se tratará en profundidad todo lo relacionado con el transporte de polvo desértico cuyo origen es el desierto del Sahara y su transporte es a lo largo del océano Atlántico, hasta la cuenca del Caribe.

Capítulo 3. Metodología

El trabajo de toda esta tesis doctoral se sustenta sobre las medidas experimentales (y sus consecuentes productos de inversión) del fotómetro CIMEL CE-318 en diferentes estaciones de medida dentro de la red mundial de medida de aerosoles AERONET, todas ellas descritas en los artículos que componen esta tesis doctoral: la estación de 'Palencia' se utiliza para el desarrollo y comparación de las tres diferentes metodologías para la identificación de episodios atmosféricos de alta turbiedad; las estaciones de Cabo Verde y Dakar (situadas al oeste de África) y las estaciones de Barbados, Ragged Point, Guadalupe, La Parguera y Cabo San Juan (situadas en la cuenca del Caribe) se utilizan para el estudio de la conexión y transporte del aerosol de origen desértico a lo largo del océano Atlántico.

Para poder realizar todo este trabajo de análisis resulta clave la calidad de los datos de partida, íntimamente ligada a la calibración de los equipos. Por ello es muy importante hablar, y detallar el proceso de calibración del fotómetro CIMEL CE-318 dentro de la red AERONET, a lo que dedicaremos un apartado entero en este capítulo. Todo este estudio de aerosoles se ha combinado y completado con medidas experimentales in-situ para la obtención de datos de concentración de polvo desértico en Barbados y de PM₁₀ en la estación de Peñausende. También se ha apoyado en el modelo HYSPLIT de cálculo de trayectorias de masas de aire para encontrar las conexiones pertinentes entre África y el Caribe.

3.1. La red AERONET y fotómetro CIMEL.

En este apartado se describe en detalle la red AERONET y su funcionamiento, el fotómetro CIMEL CE-318 (sus diferentes medidas y sus productos) y el protocolo estandarizado de calibración y su importancia.

3.1.1. La red AERONET

AERONET (Aerosol Robotic Network) es una federación de redes ([AERONET](#) norteamericana, [PHOTONS](#) de Francia, [Aerocan](#) de Canadá, [RIMA](#) en España, y otras) de fotómetros para la medida de aerosoles con el objeto de estudiar sus propiedades ópticas y validar las medidas de satélite (Holben et al., 1998). La red está gestionada por el Goddard Space Flight Center (GSFC) de NASA (National Aeronautics and Space Administration), el Laboratorio de Óptica Atmosférica (LOA) de la Universidad de Lille y el Grupo de Óptica Atmosférica (GOA) de la Universidad de Valladolid. Los objetivos descritos requieren el establecimiento de un estándar para los instrumentos, para la calibración y para el tratamiento de los datos.

La red se creó en 1998, y actualmente cuenta ya con más de 500 estaciones repartidas por todo el planeta, como vemos en la Figura 3.1. La base de datos de la red proporciona información sobre el espesor óptico de aerosoles, vapor de agua, y diversos parámetros radiativos y microfísicos obtenidos mediante algoritmos de inversión en estaciones con diferentes condiciones y regímenes de aerosoles: marítimo, continental, ártico, de alta montaña, desértico, etc. Los datos recogidos se procesan en el GSFC.

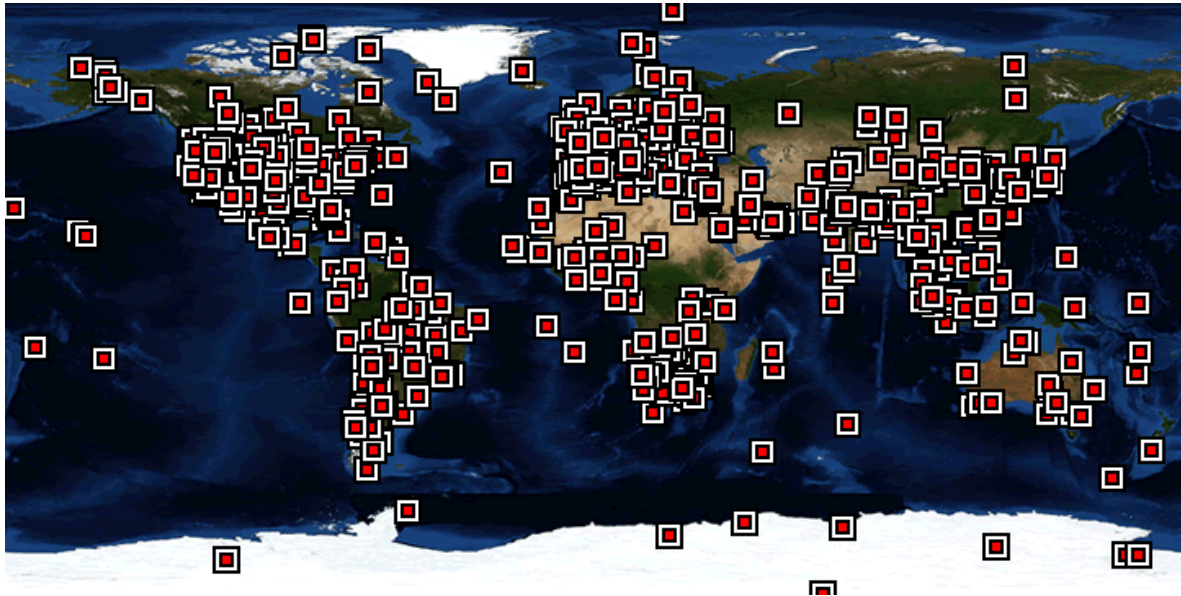


Fig.3.1.- Situación de los fotómetros CIMEL que pertenecen a la red AERONET (tomado de la web de AERONET).

Los datos de aerosoles se clasifican en tres niveles de calidad. El nivel 1.0 está constituido por las medidas brutas. El nivel 1.5 es la serie de la que se han eliminado las medidas afectadas por nubosidad, mediante un algoritmo automático (Smirnov et al., 2000, para la antigua versión 2) desarrollado por la red. Actualmente, AERONET ha implementado la versión 3 de su algoritmo automático de tratamiento de datos (Giles et al., 2019). El nivel 2.0 son los datos definitivos, una vez que se ha realizado una segunda calibración al instrumento al final del período en que haya estado en estación (más detalles sobre este proceso en la sección 3.1.3). En esta tesis doctoral se han utilizado datos con los estándares de calidad del nivel 2.0 de AERONET para el AOD y AE. Respecto los datos de inversión, se han utilizado los datos que presentan los mismos estándares de calidad de nivel 2.0 (residuo de la inversión, ángulo cenital solar, número ángulos simétricos, etc.), pero aplicando un filtro de espesor óptico en 0.2 para 440nm, en vez de 0.4 que es el criterio aplicado en los proporcionados por AERONET. Esta decisión se ha tomado debido a que, en las regiones tomadas para su estudio, los valores de espesor óptico no suelen ser tan elevados, de esta manera podemos incluir más datos de inversiones. A este nivel de calidad de los datos lo hemos denominado nivel 1.5 filtrado (e.g., Burgos et al., 2016). El uso de este nivel en los parámetros de inversión añade una incertidumbre extra a los resultados. Destacar que los datos de inversiones

en el nivel 1.5-filtrado sólo se incluyen si el dato de espesor óptico correspondiente sí que está en el nivel 2.0 de AERONET.

Los datos en cada uno de los tres niveles son archivados y distribuidos desde el GSFC, y están disponibles a través de la página web <https://aeronet.gsfc.nasa.gov>, en la que además se puede encontrar información actualizada sobre la red.

3.1.2. El fotómetro CIMEL

El instrumento CIMEL-318 (Figura 3.2) es un fotómetro automático y portátil, que está diseñado para medir irradiancia solar y radiancia del cielo en ciertas longitudes de onda para obtener distintas propiedades que definen las características microfísicas y radiativas de los aerosoles en la atmósfera. También se determina el contenido de vapor de agua sobre la vertical atmosférica, aunque este trabajo se centra únicamente en el estudio del aerosol atmosférico.

El fotómetro CIMEL Electronique-318 (CIMEL, 2004), fabricado en Francia por la firma CIMEL, es el instrumento estándar de la red AERONET. Su diseño es adecuado para estar integrado en una red en varios sentidos. En primer lugar, la mayoría de las redes de fotómetros solares han tenido un éxito limitado cuando se requiere que los técnicos realicen observaciones de rutina. Por eso un instrumento automático es un componente fundamental para cualquier red donde se precisen estas observaciones. El fotómetro CIMEL es además autónomo, puesto que se puede alimentar mediante un panel solar y está preparado para soportar la intemperie. En segundo lugar, opera con un protocolo que permite que los datos que no se necesitan puedan ser separados de los que son útiles. La importancia de esto radica en que es un instrumento automático, que va a medir tanto en condiciones de cielo nuboso como despejado. Entre las numerosas medidas se precisa extraer las que no estén afectadas por nubosidad. Por último, el instrumento recoge datos para el seguimiento de su calibrado.



Fig.3.2.- Fotografías del fotómetro CIMEL: realizando una medida (imagen izquierda) y en la posición PARK (imagen derecha).

Coexisten en la actualidad cuatro modelos o generaciones de este fotómetro. El más antiguo es un modelo analógico (todavía usaba tecnología analógica porque la señal que registran sus detectores dentro de la cabeza sensora las transmite en forma de voltaje a su caja electrónica o “datalogger”, para, posteriormente, convertirla a cuentas digitales que enviar a un ordenador). Fue el primer modelo que se implementó en la red de medidas AERONET. Posteriormente se introdujo la versión digital, cuya principal novedad es que la señal se convierte a digital en la propia cabeza sensora, antes de enviarla a su caja electrónica. Más tarde se introdujeron los llamados ‘extendidos’ y su principal novedad fue que se añadió un detector de Indio-Galio-Arsénico para extender el rango espectral hasta los 1640nm. Hasta este modelo, los anteriores tenían dos detectores de silicio que solo miden entre 340nm y 1020nm (más adelante se detallará el sentido de los dos detectores). En este nuevo modelo lo que se hizo fue reemplazar uno de los dos detectores por otro de InGaAs, lo que le permite medir en 1020nm y en 1640nm. Esto es muy útil para mejorar las medidas espectrales y para comprobar, tomando la medida de 1020nm por los dos detectores, si ambos funcionan correctamente. En 2017 se comercializó un nuevo modelo, llamado CIMEL CE-318T, o coloquialmente “fotómetro triple”. Se denomina triple debido a que ahora es capaz de medir la radiancia del sol, la irradiancia del cielo y, además, la de la luna al introducir un detector de cuatro cuadrantes con mayor sensibilidad. Además se actualizó la caja electrónica con la posibilidad de acoplarle un GPS para determinar ubicación y hora, y una memoria que puede albergar hasta un año de medidas. De esta manera podemos tener una serie de datos continua (día-noche) entre el cuarto creciente y el cuarto menguante. Para esta tesis doctoral se han utilizado, exclusivamente, datos obtenidos por fotómetros analógicos, digitales y extendidos. Esto es porque los fotómetros triples se han empezado a implementar hace, apenas unos años y en las estaciones de media utilizadas, durante los periodos seleccionados, no había instalado un fotómetro triple. Las partes descritas del fotómetro se muestran en la Figura 3.3.

Este instrumento dispone de dos detectores (en el modelo más antiguo ambos de silicio, y en los modelos actuales uno de silicio y otro de InGaAs), instalados dentro de la cabeza sensora, que está convenientemente sellada y resecada para prevenir daños en los componentes. Además de los detectores, en el interior de la cabeza hay un sensor de temperatura, que permite medir la temperatura para una posterior corrección. Los filtros interferenciales están colocados en una rueda que tiene dentro de su cabeza sensora, y que se mueve con un motor paso a paso. A la cabeza se acoplan dos tubos limitadores de campo de 33 cm. El sistema final tiene un FOV (Field Of View, campo de iluminación media) de 1.2º para ambos tubos. La cabeza del sensor se monta de tal forma que la óptica se proteja de la lluvia y de la entrada de partículas extrañas en el sistema en la posición no activa (PARK).

El final del tubo limitador de campo para la medida directa al sol está protegido por una ventana de cuarzo, permitiendo la observación con un detector UV con la suficiente

relación señal-ruido para observaciones espectrales desde aproximadamente 300nm hasta 1020nm por el canal con el detector de silicio y de 1020nm hasta 1640nm por el canal con el detector de InGaAs. El colimador para la medida del cielo tiene el mismo campo de iluminación media, pero una apertura aproximadamente 10 veces mayor obtenida con la ayuda de lentes para conseguir un mejor rango dinámico en la medida de la radiancia del cielo (almucántar, plano principal, e híbrido, que es una mezcla de los anteriores, para los triples).



Fig.3.3.- Componentes principales de un fotómetro solar CE-318..

El fotómetro tiene la suficiente relación señal-ruido para que se puedan hacer observaciones desde 300 hasta 1640nm. La medida básica **directa al sol** se compone de tres observaciones espectrales (*triple*) tomadas con un intervalo de 30 segundos. El motivo para tomar las medidas basándose en tripletes es que la variación temporal de las nubes es típicamente mayor que la de los aerosoles y se manifestaría en una variación observable entre las tres medidas del triplete, lo que sirve para eliminar las medidas afectadas por nubosidad, como ya se ha comentado. La triple observación se hace durante las secuencias de calibrado Langley de la mañana y la tarde, y a intervalos de 15 minutos durante el centro del día. La secuencia Langley consiste en medidas realizadas a masas ópticas fijas, entre masas ópticas $m=7$ y $m=2$ (entre 8° y 30° de elevación solar). Cada noche el fotómetro calcula las horas para las medidas del día siguiente. Las medidas entre la masa óptica $m=2$ de la mañana y la de la tarde se realizan a intervalos regulares de 15 minutos en torno al mediodía solar local (este período se puede disminuir hasta un intervalo de 3 minutos), y por tanto sus horas están calculadas

a partir de la hora solar verdadera (*true solar time, TST*). Además del reloj en hora GMT, el fotómetro tiene un reloj en TST con el que gobierna las medidas de la secuencia automática.

Las secuencias de medidas básicas del **cielo** son el almucántar, el plano principal (ver, Figura 3.4.), y el Híbrido para los fotómetros triples, la cual consiste en hacer un híbrido entre el escenario plano principal y el almucántar. Llamamos almucántar a una serie de medidas tomadas con un ángulo cenital constante, y ángulos de acimut específicos en relación con la posición del Sol. Durante la secuencia de medida para uno de los cuatro canales de aerosoles, el instrumento hace una medida del Sol, comienza el barrido de la aureola a través del disco solar y continúa 180° grados de acimut primero hacia la derecha y tras centrarse de nuevo en el Sol, repite hacia la izquierda. La secuencia de plano principal opera de la misma forma pero en el plano principal del Sol (ángulo acimutal constante), y barriendo distintos ángulos de elevación desde 6° por debajo del sol hasta 150°. Esto se repite también para cada uno de los cuatro filtros de medida.

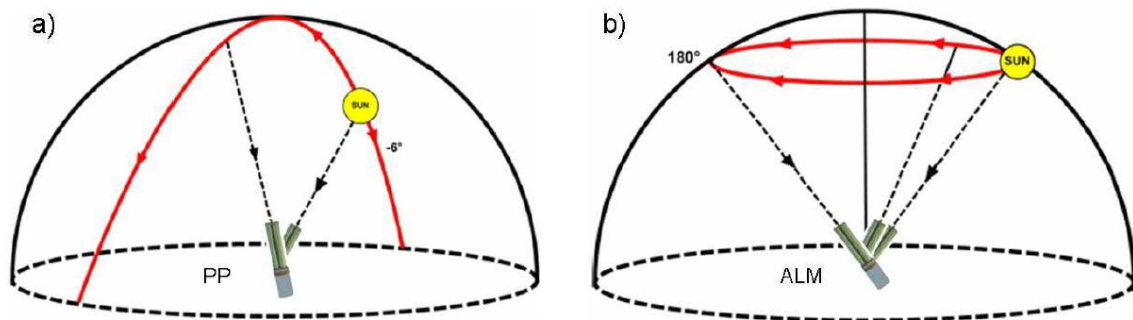


Fig.3.4.- Descripción visual de las medidas (a) plano principal y (b) almucántar. Imágenes del manual de usuario del fotómetro CE-318 (http://support.CIMEL.fr/photo/pdf/man_ce318_us.pdf). Imagen obtenida de Guirado 2015

El robot seguidor, en el que está montada la cabeza con los tubos limitadores, tiene dos motores de transmisión directa que dirigen la cabeza del sensor en los ángulos de acimut y cenital con una exactitud de 0.05°. Un microprocesador calcula la posición del sol basándose en coordenadas del tiempo y de localización, y dirige la cabeza del sensor hacia el sol con una precisión de 1°, después de lo cual un detector de cuatro cuadrantes apunta al sol con una precisión de 0.1° precisamente en el instante previo a una medida programada. Después de completar una medida de rutina, el instrumento vuelve a una posición de reposo, esperando la siguiente secuencia de medida. Un sensor de humedad expuesto a la precipitación cancelará cualquier secuencia de medida en caso de activarse, y dejará el instrumento en posición de reposo (PARK), con los colimadores mirando hacia abajo para evitar que el agua afecte a las lentes (ver, Figura 3.2.). El sensor consiste simplemente en un circuito impreso de carácter resistivo, con una serie de

pistas que las gotas de agua comunican entre sí, enviando una señal que inhibe la secuencia automática y mantiene el robot con los colimadores apuntando hacia abajo para que la lluvia resbale y no penetre en ellos.

3.1.3. Protocolo de Calibración

Cuando se pretende crear, soportar y mantener a largo plazo una red de estaciones de medidas tan grande, la calibración de los equipos puede ser uno de los problemas fundamentales. Es por esto que en la red AERONET todos los instrumentos se calibran bajo el mismo protocolo y, en un principio, en el *Goddard Calibration Facility*. En el año 2003 se sumó el *Laboratorio de Óptica Atmosférica* (LOA, en Lille) para encargarse de los aparatos integrados en PHOTONS. Posteriormente, en el año 2006 se sumó el GOA como centro de calibración junto con el observatorio de Izaña gestionado por la Agencia Estatal de Meteorología. Estas tres instituciones forman parte de la estructura denominada AERONET-Europe. El GOA y el Observatorio de Izaña se encargan actualmente de la calibración de parte de los fotómetros de Europa, norte de África, Cuba y los fotómetros en zonas polares situados en Ny-Ålesund (archipiélago de Svalbard) y en la base Antártida de Marambio. Gran parte de las calibraciones han sido realizadas, en los últimos años, con el soporte proyecto “Aerosol, Clouds and Trace Gases” (ACTRIS, y posteriormente ACTRIS-2, 2015-2019). Cabe destacar que los procedimientos de calibración de las medidas directas al sol relativos al AOD y vapor de agua (medidas de radiación solar directa) son muy diferentes a los relativos a la radiancia del cielo.

Para calibrar el CIMEL CE-318 hay que determinar una serie de coeficientes necesarios para convertir la salida del instrumento (en cuentas digitales, CN) en espesor óptico de aerosoles, vapor de agua y radiancia en $W/(m^2sr\ nm)$.

Los canales de medida directa al Sol se calibran por comparación con instrumentos patrón, los másteres que se mencionaron previamente. Esto se realiza en la terraza de la facultad de Ciencias de la Universidad de Valladolid. La calibración en radiancia se realiza en el en el laboratorio del GOA, en la misma Facultad de Ciencias. Los instrumentos de referencia o master se calibran cada año por el método de Langley en el observatorio de Mauna Loa (para NASA-AERONET) ó Izaña (para PHOTONS y GOA), donde las condiciones atmosféricas son favorables para la aplicación de este método (Toledano et al., 2018). Mediante la representación de Langley se obtiene el voltaje extraterrestre (en cuentas) para cada uno de los filtros. Este voltaje extraterrestre (CN_0) se determina con un error entre el 0.2 y el 0.5%, dependiendo del canal, para los instrumentos patrón. Esta incertidumbre sobre el CN_0 se traduce en un error absoluto de 0.002-0.005 en espesor óptico de aerosoles para los instrumentos patrón (Holben et al., 1998; Toledano et al., 2018).-

Los fotómetros de las distintas estaciones se calibran por comparación con estos instrumentos patrón, tanto antes como después de su período de operación en una

estación determinada. Se considera que el procedimiento de intercalibración se traduce en un error absoluto sobre el espesor óptico de aerosoles de 0.01-0.02, dependiendo de los canales, para los instrumentos ordinarios de las distintas estaciones de la red (Holben et al., 1998). Este error tiene en cuenta, además del procedimiento de intercalibración y los errores derivados de introducir valores climatológicos para el ozono y la presión en el procesado de datos.

Para asegurar al menos esta precisión los instrumentos se vuelven a calibrar tras pasar un año en las estaciones de campo realizando medidas. Con respecto a la estabilidad de la calibración, los elementos que peor se comportan son los filtros interferenciales. En promedio se degradan entre un 1% y un 10% por año. Al aplicar una interpolación entre los calibrados anterior y posterior al período de medidas, se asume un deterioro lineal para estos filtros. Estos filtros se sustituyen por unos nuevos cuando, en un año, se han degradado más del 5%.



Fig.3.5.- Calibración de varios fotómetros en irradiancia en la terraza del Grupo de la facultad de Ciencias en la Universidad de Valladolid. Las dos primeras posiciones a la izquierda del banco corresponden a los másteres.

Para calibrar los canales que miden la radiancia del cielo se utilizan unos protocolos diferentes. Es necesario utilizar una esfera integradora que proporcione una superficie con radiancia espectral conocida y uniforme. Estas calibraciones se llevan a cabo tanto en GSFC, como en LOA y GOA de manera estandarizada. El protocolo de calibración en radiancia comienza en el Goddard Calibration Facility, el cual posee una esfera integradora calibrada por el NIST (National Institute of Standards and Technology) donde se calibra un fotómetro de referencia, al que se denomina Máster Viajero. Una

vez se le han asignado unos coeficientes de calibración a este fotómetro se envía tanto al *Laboratorio de Óptica Atmosférica*, como al observatorio de Izaña, como a nuestro laboratorio en la Facultad de Ciencias. En nuestro caso, el GOA posee una esfera idéntica a la que usan en el GSFC (ver, Figura 3.6) y lo que se hace es transferir los coeficientes del Máster Viajero a nuestra esfera. De esta manera, tendríamos nuestra esfera integradora calibrada para los canales de medida del fotómetro CIMEL. Posteriormente, y gracias a la trazabilidad de esta calibración en radiancia, podemos calibrar los fotómetros de campo que se nos envían para su calibración.

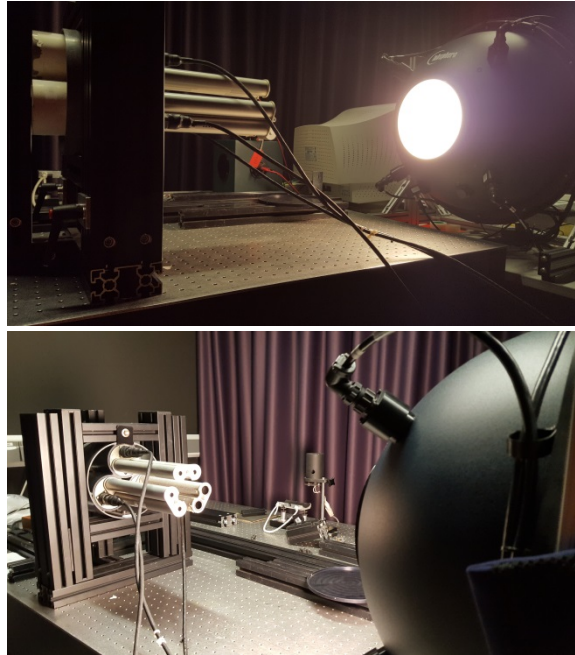


Fig.3.6.- Calibración de varios fotómetros en radiancia simultáneamente en el laboratorio del Grupo de Óptica Atmosférica, en la facultad de Ciencias en la Universidad de Valladolid.

Los detectores de silicio e InGaAs, al igual que los filtros interferenciales instalados en el fotómetro CIMEL para tomar medidas a las longitudes de onda mencionadas anteriormente son susceptibles a la temperatura, sobre todo los correspondientes a los canales de infrarrojo (1020nm y 1640nm). Es por esta razón que también se les debe realizar una caracterización en temperatura a todos los fotómetros cada vez que se le cambia un filtro. Para ello introducimos el fotómetro en una cámara térmica que tiene una abertura en un lateral, y en esa abertura colocamos otra esfera integradora estabilizada. Una vez alineado el sistema se le programa una rampa de temperatura que va desde los +50°C a los -40°C, a una velocidad de 0.3°C/min (para cubrir todo el rango de temperaturas que pueda soportar el fotómetro en cualquier lugar del planeta donde se requiera instalar) y se le hace tomar medidas de manera continua. Una vez ha terminado, y con la curva obtenida de radiancia para cada temperatura, podemos asignar un coeficiente en temperatura para cada canal de medida del fotómetro.

3.2. Otra instrumentación.

Aunque un amplio porcentaje de todo el trabajo producido en esta tesis doctoral ha sido realizado con medidas obtenidas del fotómetro CIMEL, como apoyo se han utilizado también los datos obtenidos por otros instrumentos de medida así como otros métodos de medida de aerosoles (como por ejemplo in situ, medidas en superficie y lidar) y modelos de trayectorias de masas de aire como HYSPLIT. De esta manera ha sido posible realizar un trabajo lo suficientemente completo. A lo largo de este capítulo 3.2. se detallan los más relevantes.

3.2.1. Medidas de aerosoles en superficie (PM₁₀ y concentración de polvo)

En cuanto a los datos de PM₁₀ en la estación de medida in-situ de Peñausende, pertenecientes a la red de medidas *European Monitoring and Evaluation Programme* (EMEP), los cuales han sido utilizados en el capítulo 4 (artículo 1), son los oficiales con los que trabaja la comisión Europea para los temas relacionados con la calidad del aire (recogidos en la legislación de calidad del aire de la Unión Europea: (<https://ec.europa.eu/environment/air/quality/legislation/pdf/finalwgreportes.pdf>) y su calidad está garantizada (Pey et al., 2013).

En cuanto a los datos de concentración de polvo utilizados para el estudio y comparación del aerosol de origen desértico a lo largo del océano Atlántico, se trata de unos datos cedidos por la universidad de Miami. El protocolo de calidad seguido en su obtención es el siguiente: Las muestras se recogen en Ragged Point, Barbados (13.1650N, 59.4320W). Las muestras de aerosol se recolectan durante un período de un día que comienza nominalmente a las 6 a.m., hora local. Las muestras se recolectan todos los días, excepto por condiciones climáticas inusuales, días festivos y fallos en la instrumentación. El aire se aspira a través de un filtro Whatman 41 (W-41) de 20 x 25 cm ubicado en la parte superior de la torre de 17 metros ubicada en un acantilado de 30 m en la costa más oriental de Barbados. Las bombas están ubicadas en la base de la torre. El muestreo se realiza a una velocidad de flujo de aproximadamente 1m³/min, produciendo volúmenes promedio de muestreo de aproximadamente 1000m³ en el transcurso de un día en condiciones de muestreo típicas. La velocidad de flujo se mide monitoreando la caída de presión a través de una placa de orificio afilada calibrada. En la capa límite marina, la eficiencia de recolección de los filtros W-41 es mayor del 99% para sulfatos de origen no marino ('non sea salt') SO₄ = (Pszenny et al., 1993), 95% para aerosoles marinos NO₃ y 95% para polvo (Savoie, 1984; Arimoto et al., 1990; Kitto y Anderson, 1988).

Para minimizar los impactos de las fuentes locales, el muestreador se controla mediante un sensor de viento, de modo que solo se activa cuando se cumple la condición de dirección del viento y cuando la velocidad del viento era superior a 1m/s.

El sector de muestreo está determinado por el ángulo de océano abierto donde se determina el norte por la costa norte de Barbados y en el sur por el promontorio en Deebles Point. El criterio de corte de baja velocidad está destinado a eliminar las condiciones cuando los vientos son ligeros y variables.

Los filtros extraídos se colocan en un horno de mufla durante aproximadamente 14 horas (durante la noche) a 500°C; Se supone que el peso de los residuos de ceniza (menos filtro en blanco) es polvo mineral. Las cenizas en blanco producen un error estándar en la concentración de polvo mineral que es esencialmente constante a $\pm 0.1\mu\text{g}/\text{m}^3$ para concentraciones inferiores a $1\mu\text{g}/\text{m}^3$; a niveles más altos, el error estándar es de aproximadamente $\pm 10\%$. El peso de la ceniza del filtro subestima la verdadera concentración de polvo debido a la pérdida de minerales solubles del suelo durante el procedimiento de extracción y durante el calentamiento, la volatilización del agua ligada y varias especies (por ejemplo, algunos haluros) y la descomposición de otros componentes. Al principio del programa se analizaron las diversas pérdidas y se llegó a un factor de corrección de 1.3 (explicado en detalle en el siguiente párrafo), es decir: peso de ceniza * 1.3 = peso de polvo (Trapp et al., 2010).

Posteriormente, se utilizó un análisis de activación para medir las concentraciones elementales en el polvo. El diagrama de dispersión de la concentración de Al, medido por la activación de neutrones (Arimoto et al., 1995) frente los pesos de las cenizas del filtro de 1349 muestras cargadas de polvo, recolectadas en Barbados, produce una concentración de Al de 10.4%. La abundancia promedio de Al en los suelos está en torno al 6% -8% (Taylor y McLennan, 1985).

3.2.2. Lidar POLIS

Para completar los datos recogidos por el fotómetro CIMEL en el estudio y análisis del aerosol de origen desértico, se han utilizado los datos obtenidos por un sistema Lidar de la universidad Ludwig Maximilian de Munich (LMU), el Portable Lidar System (POLIS).

Un LIDAR (Light Detection and Ranging) es un dispositivo que permite determinar la luz dispersada por la atmósfera a distintas alturas (distancias) desde un emisor láser pulsado. La distancia al objeto se determina midiendo el tiempo de retraso entre la emisión del pulso y su detección a través de la señal retrodispersada por las moléculas y aerosoles. En particular, para el estudio de aerosoles, la señal emitida está polarizada en una dirección concreta. De tal manera que, si estudiamos en detalle la luz que regresa al telescopio, no solo el tiempo, sino la intensidad y la depolarización de dicha luz, podremos obtener información sobre la cantidad y tipo de aerosol a diferentes alturas.

El lidar POLIS es un sistema lidar de seis canales que mide las longitudes de onda desplazadas N_2 Raman a 387 y 607 nm y las señales elásticas retrodispersadas (polarizaciones paralela y perpendicular) a 355 y 532 nm con alta precisión

(Freudenthaler et al., 2015). Así, se pueden recuperar los perfiles del coeficiente de extinción de partículas (α_p) y el coeficiente de retrodispersión (β_p), de la relación lidar (S_p), y de la relación de depolarización lineal de volumen y partículas (δ_v) y (δ_p) a 355 y 532nm. La superposición completa de POLIS es de aproximadamente 200 a 250m de altura sobre el telescopio receptor dependiendo de la configuración del sistema. La resolución del rango de los datos en bruto es de 3.75m; La resolución temporal es de 5 a 10s dependiendo de las condiciones atmosféricas. La frecuencia de repetición de la frecuencia del láser de Nd: YAG duplicado y triplicado es de 10Hz con una energía de pulso de 50mJ a 355nm y 27mJ a 532nm (Groß et al., 2015).

3.2.3. Modelo HYSPLIT

El modelo HYSPLIT “Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory” es un sistema útil para el cálculo de trayectorias y retro-trayectorias de masas de aire a diferentes alturas utilizando un enfoque basado en las partículas (Draxler and Rolph, 2003).

Para comprender como funciona el modelo HYSPLIT, primero tenemos que explicar cómo funcionan dos tipos de modelo de predicción de trayectorias de masas de aire, los modelos lagrangianos y los modelos de velocidad vertical.

Los modelos lagrangianos se caracterizan por hacer uso de un sistema de referencia que se ajusta al movimiento atmosférico. Es decir, las emisiones, reacciones, deposición y mezclado de los contaminantes se analizan para un volumen de aire que va cambiando su posición de acuerdo con la velocidad y dirección del viento –y no para una región entera como en los *eulerianos*. Bajo este esquema general, los modelos lagrangianos se pueden clasificar como modelos de *trayectoria* y modelos *gaussianos*, de acuerdo con la geometría del sistema de modelación. Los procesos antes mencionados se pueden simular para una columna hipotética de aire, como en los modelos de trayectoria, en tanto que cuando la simulación se hace para una pluma de emisión, continua o discreta (como paquetes comúnmente llamados “puffs”), se trata de modelos gaussianos.

En los modelos de trayectoria se define una columna hipotética de aire que se desplaza bajo la influencia de los vientos dominantes y se asume que no hay intercambio de masa entre la columna y sus alrededores, excepto por las emisiones que ingresan a la columna por la base durante su recorrido (Seinfeld y Pandis, 1998).

La columna se mueve continuamente de tal forma que el modelo estima la concentración de los contaminantes en diferentes lugares y momentos a partir de las concentraciones iniciales, las emisiones y las transformaciones químicas. Su aplicación es recomendable en evaluaciones de calidad del aire que consideren el transporte a grandes distancias, para modelar el comportamiento de masas individuales de aire e

incluso para evaluar la calidad del aire en casos en los que existan limitaciones de información para caracterizar las emisiones y la meteorología de una región completa.

Su estructura se basa en una biblioteca modular con los principales programas para cada aplicación principal: trayectorias y concentraciones en el aire. En nuestro caso se ha utilizado el modelo de trayectorias.

Los datos meteorológicos que se utilizan de entrada para obtener un cálculo preciso de las trayectorias están habitualmente organizados en cuadrículas de latitud y longitud y son necesarios en intervalos de tiempo regulares. En particular, para esta tesis doctoral se han usado los datos pertenecientes a la base de datos global NCAR/NCEP Reanalysis (Kalnay et al., 1996). Los datos de entrada son interpolados a una sub-cuadrícula interna centrada para reducir los requisitos de memoria y aumentar la velocidad de cálculo.

Este modelo permite calcular la trayectoria de una masa de aire tanto hacia atrás en el tiempo (retro-trayectoria), como hacia adelante en el tiempo, pudiendo de esta manera calcular las trayectorias, a una hora concreta. Es por estos motivos que el estudio de masas de aire mediante trayectorias es habitual en los estudios de aerosoles como forma sencilla de averiguar la procedencia y ayudar a la correcta identificación de tipos de aerosol o eventos (Cabello et al., 2012).

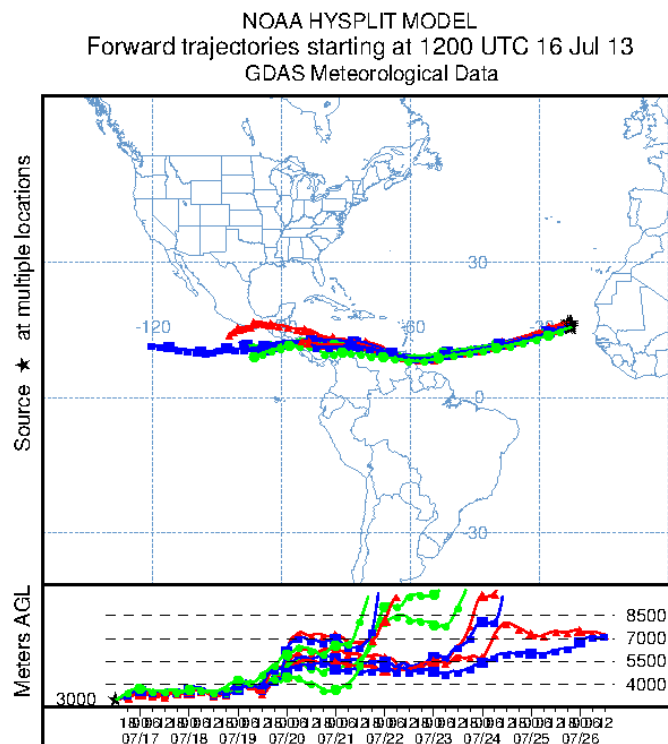


Fig.3.7.- Ejemplo de trayectoria de masas de aire calculadas por el modelo HYSPLIT (hacia adelante en el tiempo) 240h, a 3000m.

Capítulo 4. Comparison of three different methodologies for the identification of high atmospheric turbidity episodes

Resumen

Dado el contexto planteado en la introducción para que sea posible un estudio en profundidad, tanto de las propiedades como en transporte de aerosoles, es necesario el desarrollo de diferentes metodologías de identificación y caracterización de episodios de alta turbiedad causados por diferentes tipos de aerosol.

El siguiente capítulo presenta una comparación de tres metodologías diferentes que han sido utilizadas para identificar episodios de alta turbiedad en el centro-norte de la Península Ibérica. La primera metodología (denominada inventario C&S), la cual servirá como referencia para las otras metodologías, se basa en la interpretación conjunta de datos espesor óptico y exponente de Ångström (ver Sección 2.1 y 2.2) y medidas in situ de superficie (ver Sección 3.2.1), haciendo la inspección visual de toda la serie temporal de valores instantáneos con valores umbrales predefinidos. También se tiene en cuenta información complementaria, como la observación de las retrotrayectorias de masas de aire calculadas con el modelo HYSPLIT (Ver Sección 3.2.3). Esta metodología es una generalización del inventario de episodios desérticos en el centro-norte de la Península Ibérica durante el período 2003-2014 basado en medidas de fotómetro y PM_x realizado por Cachorro et al. (2016). La segunda metodología, denominada SDA, se basa en usar el algoritmo de deconvolución espectral incluido en la red AERONET. Los productos derivados de este algoritmo se basan en la dependencia espectral del AOD. Representando el exponente de Ångström frente a su derivada se extraen los componentes del modo fino y el modo grueso del espesor óptico. Un análisis estadístico sistemático nos lleva a proponer el percentil 85 (P85) como un indicador de episodios de alta turbidez atmosférica asociados con cada modo. Un valor de AOD_F superior a 0,12 (P85 de AOD_F) se etiqueta como evento de aerosol en modo fino (primer indicador "F"). Si el valor de AOD_C es mayor que 0.05 (P85 de AOD_C), el evento se declara de modo grueso (primer indicador "C"). Si ambos indicadores de cada modo individual están activados, entonces el evento se etiqueta como una mezcla de aerosol de modo fino y grueso (indicador "M"). Una vez que se identifican los tipos de aerosol "C", "F" y "M", debemos asegurar la fuente de las partículas de aerosol si el algoritmo SDA se compara con el inventario C&S anterior utilizando las posiciones de las trayectorias de las masas de aire. Además, también se pueden identificar los tipos predominantes de la mezcla ("MA" o "MD"). La tercera metodología, denominada SPR, se basa en los niveles de concentración de partículas (PM) en la superficie y asegura en gran medida la identificación de episodios de polvo africano, independientemente de su intensidad, implica la interpretación conjunta de productos meteorológicos, mapas de aerosoles de

pronósticos de modelos, imágenes satelitales y trayectorias de masa de aire. Los tres métodos permiten la identificación de aerosoles de polvo mineral de origen desértico, mientras que la identificación de aerosoles con origen en quema de biomasa o contaminación y posibles mezclas se consigue con las metodologías C&S y SDA. Los tres inventarios muestran aproximadamente un 60% de coincidencia en un período de referencia 2005-2014. Cuando se comparan los inventarios, el acuerdo es muy alto si hay datos de aerosol en columna disponibles: > 90% para el tipo de aerosol de origen desértico y > 70% para el tipo de aerosol de modo fino. El estudio comparativo de estos tres inventarios de aerosoles ha sido motivado por la necesidad de automatizar las metodologías existentes, de cara a poder analizar grandes volúmenes de datos. Por lo tanto, se ha podido observar que grandes eventos (eventos con gran carga de aerosol) pueden ser identificados con cualquiera de las tres metodologías mencionadas. No obstante, los eventos más débiles (con poca carga de aerosol), así como los días de inicio y fin de cada evento, son la principal fuente de discrepancia entre ellos

Artículo 1. Comparison of three different methodologies for the identification of high atmospheric turbidity episodes

D. Mateos¹, V. E. Cachorro¹, C. Velasco-Merino¹, N. T. O'Neill², M.A. Burgos¹, R. Gonzalez¹, C. Toledano¹, M. Herreras¹, A. Calle¹, A.M. de Frutos¹

¹ GOA, Departamento de Física Teórica, Atómica y Óptica, Facultad de Ciencias, Universidad de Valladolid, Paseo Belén 7, 47011, Valladolid, Spain.

² CARTEL, Université de Sherbrooke, Sherbrooke, Québec, Canada

Abstract

The identification and characterization of High Atmospheric Turbidity (HAT) episodes is a key objective of global aerosol monitoring. This study presents a comparison of three different methodologies that were used to identify HAT episodes in the north-central Iberian Peninsula. The first methodology (named C&S inventory) is based on columnar aerosol optical depth (AOD from the Aerosol Robotic Network, AERONET) and surface particulate matter concentrations (PM_x from the European Monitoring and Evaluation Programme, EMEP) as well as ancillary information. Another methodology (named SPR) is based on PM surface concentrations levels and ancillary information. Both methods are carefully reviewed by human observers. A third method, based only on fine and coarse mode values of AOD was also analysed. This method (the SDA or Spectral

Deconvolution Algorithm) is found to be a good operational candidate for automating the identification of HAT episodes. The three methods allow for the identification of mineral desert dust (coarse type 'D') aerosols and aerosols of fine type, 'A' (i.e. biomass burning or polluted aerosols): their mixture, categorized as 'MD' and 'MA' classes (depending of the prevailing 'D' or 'A' type) is only identified in the C&S and SDA inventories. The three inventories show about 60% coincidence across a 2005-2014 reference period. When the C&S and SDA inventories are compared, the agreement is very high if columnar aerosol data is available: >90% for desert aerosol type and >70% for fine aerosol type. The comparative study of these three aerosol inventories was motivated by the need to automate existing methodologies.

Keywords: high turbidity episodes; columnar and surface aerosols; desert dust; biomass burning urban industrial; coarse and fine modes;

Nomenclature

α : spectral derivative of AOD at 500 nm

α' : Spectral derivative of α

A: Flag for pollution caused by urban-industrial and biomass burning aerosols

AE: Ångström exponent

AOD: Aerosol Optical Depth

AOD₅₀₀: Aerosol Optical Depth at 500 nm

AOD_C: Coarse mode Aerosol Optical Depth at 500nm

AOD_F: Fine mode Aerosol Optical depth at 500nm

C: Flag for pollution caused by coarse aerosols (only in SDA inventory)

C&S: 'Columnar and Surface' inventory

D: Flag for pollution caused by mineral dust aerosols

DS: Direct Sun products from AERONET network

η : fine mode fraction (at 500 nm)

F: Flag for pollution caused by fine aerosols (only in SDA inventory)

HAT: High atmospheric turbidity

M: Flag for pollution caused by a mixture of fine and coarse aerosols (only in SDA inventory)

MA: Flag for a pollution mixture with predominance of urban-industrial and biomass burning aerosols

MD: Flag for a pollution mixture with predominance of mineral dust aerosols

NT: Flag for non-turbid cases (only in SDA inventory)

SDA: 'Spectral Deconvolution Algorithm' inventory

SPR: 'Spanish and Portuguese Reference method' inventory

1. Introduction

Atmospheric aerosols represent a large source of uncertainty in the complex Earth-atmosphere climate system. They have a notable impact on critical issues such as the radiative budget, air quality, human health, hydrological cycle, cloud life cycle, etc. (e.g., Boucher et al., 2013). The contribution of aerosols to these effects is magnified during high atmospheric turbidity (HAT) episodes: strong aerosol loads that occur over large, regional, or local scales and over short time periods. Aerosols from distant or nearby emission sources can, during HAT episodes, dramatically change the typical values observed for aerosol load levels in a given area as well as their optical and microphysical properties. Aerosol characterization during such HAT episodes can be accomplished using different measuring techniques. For air quality monitoring, PM_{10} (particulate matter concentration for particle sizes below 10 μm in diameter) or speciation measurements are used to detect those days with concentration data in excess of the established safety thresholds for human health (e.g., Pey et al. 2013, using European Monitoring and Evaluation Programme, EMEP, data). Networks of ground-based data using Sun photometers or Lidar instruments, such as AERONET (AERosol Robotic NETwork, Holben et al., 1998) and EARLINET (European Aerosol Research Lidar Network, Pappalardo et al., 2014), can provide regional to global-scale indicators of HAT episodes. Furthermore, satellite observations provide data for wider interpretation of global scale phenomena (e.g., CALIOP-CALIPSO, MODIS) (e.g., Levy et al., 2010).

Recent studies have demonstrated the relevance of long-term identification and characterization of different HAT episodes (e.g., Toledano et al., 2007; Valenzuela et al., 2012; Gkikas et al., 2013, 2016a; Pey et al., 2013; Burgos et al., 2016). Columnar quantities such as Aerosol Optical Depth (AOD) and the Ångström Exponent (AE), defined by the spectral slope of the AOD across a given wavelength interval, are commonly used in the discrimination of aerosol types: these being mainly, maritime, desert dust, urban, biomass burning, and mixtures (e.g., Holben et al., 2001; Toledano et al., 2007; Bennouna et al., 2016). A simple scattergram plot of AE vs AOD enables certain thresholds to be defined in order to discriminate aerosol types. The use of air mass back trajectories allows the identification of aerosol sources (e.g., Pace et al., 2006; Valenzuela et al., 2012) and is accordingly, a key source of information for aerosol type identification. Similar methods have been recently applied to satellite data to identify and characterize different aerosol types over large areas (e.g., Gkikas et al., 2016a, 2016b). These methods differ in the selected aerosol parameter/properties (such as fine mode fraction, effective radius, among others) and threshold values. However, the weakness of these methods is that generally they are only efficient for identifying relatively strong episodes in terms of AOD values.

The lack of studies comparing different methodologies whose nominal mandate is the identification of aerosol episodes, underscores the need for more exhaustive

analyses of this nature. Hence, this study presents a comprehensive comparison between three different HAT identification techniques that employ columnar and/or surface data. Cachorro et al. (2016) developed a long-term (2003 to 2014) desert dust inventory over north-central Spain based on the visualization and analysis of both surface and columnar aerosol data together with other ancillary information. This methodology is also employed in this study (with some adaptations) to identify HAT episodes related to the incursion of urban-industrial and biomass burning aerosols and other fine mode dominated aerosols. This day-by-day visualization of an entire data series over a certain site can be considered the most comprehensive way to address the issue of HAT event day identification, and constitutes our first inventory. The handicap of such careful monitoring is that the process cannot easily be applied to a large area with many measurement stations. Moreover, long-term datasets often have missing data for extended periods of time. This lack of measurements may prevent from appropriate detection of HAT episodes. Given the strong seasonality of long-range transported aerosol events, the absence of data in certain periods or seasons can also affect the overall statistics. The combination of columnar and in situ aerosol data is therefore helpful to minimize the gaps in the analysis.

A second inventory is performed every year by the Spanish Government using weather forecasts, aerosol model forecasts and a re-evaluation of the inventory with surface PM concentrations in different sectors of the Iberian Peninsula (Viana et al., 2010; MITECO, 2019). These two methods must be carried out by human observers with considerable expertise and can require significant time to be completed. They are difficult to apply in real time over large areas with many sites. Indeed, a bibliographic search indicated that no real time reference method is currently available. For these reasons a new automatic method, requiring only aerosol columnar data, is proposed and applied in this study. This third inventory method, applied for the first time as part of this study, detects the occurrence of coarse and/or fine mode HAT event days.

The very clean background over the plateau of the north-central Iberian Peninsula enables an accurate identification of different types of HAT episodes. The closeness to the African continent ensures that desert dust aerosol will be one of the most dominant aerosol types throughout the year. Urban-industrial and biomass burning aerosols are also present due to local sources as well as long range transport from European and North American sources. The complex orography of the Iberian Peninsula also ensures extended periods of air mass recirculation and therefore the observation of aged aerosol, particularly during the summer months.

The aim of this study is to carry out a comprehensive comparison among the three above-mentioned methodologies for identifying high atmospheric turbidity event days in the central area of the Iberian Peninsula between 2005 and 2014. For illustration, the identification of all the episodes registered during the entire year 2014 is presented as

a particular case study. Furthermore, the sensitivity of the proposed automated method to the threshold selection is also investigated.

2. Aerosol Database

2.1. Columnar AERONET and surface EMEP aerosol data

Columnar aerosol data presented in this study are measured using the CIMEL CE-318 Sun photometers (Holben et al., 1998; Giles et al., 2019) at the Palencia site (41.9° N, 4.5° W, and 750 m a.s.l.) belonging to AERONET/RIMA (AERosol RObotic NETwork/ “Red Iberica de Medida fotométrica de Aerosoles”) since 2003. Direct sun (DS) data include spectral AOD_{DS} at 7 different wavelengths (340, 380, 440, 500, 675, 870, 1020 nm respectively) and the associated Ångström Exponent (AE_{DS}) retrieved from the AOD using different pairs (or intervals) of wavelengths (Vergaz et al., 2001). These 15-minute daytime records (level 1.0) are processed under cloud-screening algorithm (level 1.5) and they are considered as ‘instantaneous values’ which can be used to identify changes of aerosol properties across very small time scales. All these records are also daily averaged to characterize day to day statistics. The ‘instantaneous’ or daily averaged databases are used depending on the case. Only AERONET version 2 level 2 (quality assured) DS products between 2003 and 2014 were analyzed. The data coverage in this period for the sun photometer is 67% (for AOD), and the EMEP data coverage is 90% (for PM₁₀). For further details and year-to-year information, see Cachorro et al. (2016).

With respect to aerosol surface concentration measurements, the closest site to Palencia is a rural site located at Peñausende (41.28°N, 5.87°W, and 985 m a.s.l.), belonging to the EMEP (European Monitoring and Evaluation Programme) network. Daily sampled PM₁₀ particle concentrations are obtained by gravimetric determinations. These high quality measurements are the official data reported to the European Commission (e.g., Pey et al., 2013). These PM₁₀ data started in year 2000. The distance of 100km between Palencia (columnar data) and Peñausende (surface data) does not introduce any effect regarding the identification of HAT event days (Cachorro et al., 2016).

2.2. AERONET SDA collection data

AERONET provides a high number of aerosol products derived from different algorithms which use different inputs (direct sun, sky radiance measurements, AOD data, etc.). In particular, the Spectral Deconvolution Algorithm (SDA ; O’Neill et al., 2001, 2003) algorithm employed by AERONET utilizes as input five spectral AOD values in the 380-870 nm spectral range. The output is a variety of fine and coarse mode products

(see Section 3.2). Those products are evaluated at a reference wavelength of 500 nm, and include: total AOD at 500nm (named AOD_{500} as mentioned above), fine mode AOD (AOD_F) and coarse-mode AOD (AOD_C), fine mode fraction ($\eta=AOD_F/AOD$), spectral AOD derivative (α , as per O'Neil et al., 2001), and spectral derivative of a , denoted as a' . Here, we must note the different meaning of a and AE, both are defined in the literature as the Ångström coefficient, but a is defined as the spectral derivative of AOD at a specific wavelength (500 nm in the SDA algorithm) and AE is related with a given spectral wavelength interval. More details about these concepts were given by Shifrin (1995). Therefore the values of a and AE are different but a strong correlation exists between both coefficients.

The AERONET version 2 level 2 (quality-assured) SDA product is only available since July 2008 at Palencia site. To extend the analysis between 2005 and 2008, an extra quality control was applied to level 1.5 data to ensure data and retrieval SDA reliability. We were able to extend our analysis to the entire 2005-2014 period. A few details concerning the nomenclature are worth to be mentioned: the DS algorithm AODs used throughout the text are those derived at the 440 nm channel and always appear with the subscript 'DS' (see first paragraph of Section 2), while the SDA retrievals are subscript-free and referenced to a wavelength of 500 nm.

Based on these measured/derived data, three different inventories have been constructed. The inventory named "SPR" (see Section 3.3) uses only surface PM_{10} data; and the "SDA" inventory uses only columnar AOD data (see Section 3.2). The inventory named "C&S" (see Section 3.1) uses both columnar AOD_{DS} at 440 nm ($AOD_{DS,440nm}$) and surface PM_{10} data. The common database with both columnar and surface aerosol data used in this study spans between 2005 and 2014.

2.3. Ancillary information: HYSPLIT model

Air mass back-trajectories of 120 hours duration were calculated with the version 4 HYSPLIT model (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory; Stein et al., 2015) at 8, 12 and 16 UTC, and at six atmospheric heights (500, 1500, 3000, 4000, 5500, and 7000 m a.g.l.) in order to check the trajectory of the air masses and therefore the possible aerosol sources during HAT episodes. The six heights were chosen to accommodate the fact that the transport of particles associated with high turbidity episodes can occur at altitude levels below and above the boundary layer. The evaluation of the air mass trajectories is carried out at three different times each day in an attempt to account for different diurnal variants of HAT occurrence. This includes when a HAT episode is starting/ending. During these initial or final periods, the HAT conditions can occur only in just a few hours of the whole day. The meteorological database used as input for HYSPLIT is the Global Data Assimilation System (GDAS)

dataset. HYSPLIT-derived sources were defined when the air masses spent at least 15% of the entire back-trajectory (at any height) over Africa, Europe, Mediterranean Basin, American Continent, Atlantic Ocean, and locally (Iberian Peninsula). Further details of the followed methodology were explained in detail by Mateos et al. (2015). In this study, the air mass back-trajectories were, in particular, employed to corroborate the presence of mineral dust, urban-industrial and biomass burning aerosols.

3. Methods for identifying high atmospheric turbidity conditions

The methods presented in this study allows discriminating between two main types of HAT episodes: those related to coarse mode mineral dust, and those related to fine particles whose origin can mostly be attributed to anthropogenic sources and biomass burning. Desert dust outbreaks will be identified with a 'D' flag. The 'A' flag includes mainly fine mode aerosols resulting from fossil fuel combustion from industry or urban-pollution, biomass burning (BB) aerosols from forest fires and other atmospheric processes, mainly of anthropogenic origin. However, this well-defined coarse and fine particle types are usually mixed with variable fine/coarse mode contribution, giving rise to aerosol mixtures. We have distinguished two of them, 'MD' and 'MA', to indicate that desert dust or fine aerosol particles are predominant in that aerosol mixture, respectively. These cases of mixtures are only distinguished in the C&S and SDA methodologies (see below).

We must note that episodes dominated by fine mode particles represent aerosols of different type which are difficult to distinguish because of the necessity of other more specific parameters (i.e., absorption coefficient or single scattering albedo in the case of columnar aerosol measurements or speciation in the case of PM₁₀ filter measurements). However, given the clean atmospheric characteristic of our area of study, BB and pollution aerosol episodes can be easily distinguished by analysing ancillary information, such as air mass back-trajectories and public domain information (e.g. newspaper information about local or strong regional forest fires).

We also must emphasize that the existing methodologies to detect and evaluate the episodes of HAT are not simple, because they require different data and information of different sources to give reliable results. and they are time-consuming and rely on the researcher expertise. Therefore, novel automatic methodologies as proposed in this paper are of great relevance, as they can provide objective and near real-time HAT identification.

3.1. Method using Columnar and Surface (C&S) aerosol data: C&S inventory

One of the HAT inventories used in this study follows the methodology described by Cachorro et al. (2016) for the identification of mineral dust intrusions. The methodology used in that study serves as a reference for the other methodologies. It is based on the joint interpretation of columnar (AOD, AE) and surface data (PM₁₀), making the visual inspection of the whole time series of instantaneous values with predefined threshold values. Obviously, the procedure is hard and time consuming, similarly in this aspect to the SPR method. The advantage of the simultaneous usage of columnar and surface aerosol quantities is that they contain complementary information which can help to identify and classify a HAT event day even if a HAT fingerprint is absent or very weak in one of the two data sets. Furthermore, the impact of missing one data type on a certain period is minimized since the other data can still be analyzed. Besides, in order to ensure the reliability of the HAT event, ancillary information is also required.

Due to the clean continental conditions of our study area, moderate and high intensity episodes can be detected by establishing certain AOD_{DS} thresholds at 440nm wavelength (AOD_{DS,440nm}) and in terms of PM₁₀. Instantaneous values of AOD_{DS,440nm} and AE_{DS} are used for the detection of high turbidity events, together with the daily concentrations of PM₁₀. The HAT episodes are defined as those cases showing an aerosol load of AOD_{DS,440nm} ≥ 0.18 and/or PM₁₀ ≥ 13 μg/m³ (Cachorro et al., 2016). These thresholds were established based on the analysis of aerosol climatology (both AOD_{DS,440nm} and PM₁₀) and previous knowledge about the aerosols over this area (e.g., Bennouna et al., 2013; 2016; Burgos et al., 2016).

The discrimination between fine or coarse particles causing the high turbidity is defined in terms of AE_{DS} parameter. The AE_{DS} < 1.0 is taken to identify desert dust events ('D' flag) and AE_{DS} ≥ 1.5 to represent urban-industrial and biomass burning pollution ('A' flag). The interval of 1.0 < AE_{DS} < 1.5 is taken to represent mixtures, either labelled as 'MD' or 'MA' according to the available ancillary information.

The classification of each day of each event is corroborated by analyzing ancillary information (a process which is also very beneficial in helping to determine the duration of the events). This ancillary information is, mainly: HYSPLIT backward air mass trajectories, MODIS RGB and AOD images, meteorological maps and the NAAPS Global Aerosol model (Navy Aerosol Analysis and Prediction System). Further details about this method were described in detail by Cachorro et al. (2016). The used ancillary information for this method and SPR method is very similar.

The C&S inventory includes 667 HAT event days in the 2005-2014 period (18% of the days). A total of 330 are categorized as dust days, with 193 in the "D" category and the rest (137) in the "MD" category. A total of 189 and 148 event days were, respectively, attributed to the 'A' and 'MA' categories.

3.2. Method using Spectral Deconvolution Algorithm (SDA): SDA inventory

3.2.1. First step in the identification of fine and coarse mode HAT episodes

Products derived from Spectral Deconvolution Algorithm are based on the spectral curvature of the AOD values. This information, represented by its spectral derivatives, α and α' , is essential to extracting the fine and coarse mode components of the AOD. The bimodal basis for spectral curvature analysis can be found in O'Neill et al. (2001) while the fine/coarse mode retrieval algorithm (the Spectral Deconvolution Algorithm or SDA) was described by O'Neill et al. (2003). The SDA retrievals of fine mode AOD (AOD_F) and coarse mode AOD (AOD_C) along with the corresponding fine mode AOD fraction (η) at 500nm wavelength, are an operational AERONET product.

The AOD_F and AOD_C time series for the entire data set were analysed in detail (e.g., frequency histograms are shown in Figure S1). A systematic statistical analysis leads us to propose the 85th percentile (P85) as an indicator of high atmospheric turbidity episodes associated with each mode. An AOD_F value exceeding 0.12 (P85 of AOD_F) is labelled as fine mode aerosol event (first flag 'F'). If the AOD_C value is larger than 0.05 (P85 of AOD_C) the event is declared to be coarse in nature (first flag 'C'). If both flags of each individual mode are activated, then the event is labelled as an aerosol mixture ('M' flag). To sum up:

- If $AOD_C \geq (P85)_C$: 'C' flag (coarse event)
- If $AOD_F \geq (P85)_F$: 'F' flag (fine event)
- If $AOD_C > (P85)_C$ & $AOD_F > (P85)_F$: 'M' flag (mixture event)
- If $AOD_C < (P85)_C$ & $AOD_F < (P85)_F$: 'NT' flag (non-turbid)

where $(P85)_{C/F}$ is the corresponding percentile for the coarse(C)/fine(F) AOD at 500nm wavelength.

The use of an 85th percentile is, an appropriate way of objectively adapting our HAT threshold approach to local or regional conditions. Given that this inventory is generated by using SDA retrievals, it is labelled the 'SDA' inventory. This method, therefore, only uses AOD_F and AOD_C data. In order to check the aerosol type identification the α' vs α space is used, which is also defined by SDA products. This approach is rendered more informative if one contextualizes the aerosol classification with families of fine mode fraction (η) and spectral curvature parameter ('t') curves (see the definition of "t" given by O'Neill, 2001). The 't' values are related to the fine mode aerosol type and independent of η (independent of the aerosol content as per O'Neill, 2010). Furthermore, it provides a visible tool that helps to better understand how a certain aerosol type interacts with the local environment. This kind of diagram, overlaid by the continuously differentiable (η , t) family of curves is a graphical representation of the

curvature implications of bi-modality. Figure 1a shows an α' vs α scatterplot with the superimposed curves of constant η and 't' for the different classes of HAT event days ('C', 'F', and 'M' categories) at the Palencia site. Most HAT conditions in the coarse mode present negative α' values and η below 0.7. With respect to 'F' event days, they are placed in the upper region of the plot: $\eta \geq 0.7$ and positive α' , with most of the 't' values between -0.47 and 1.39. The mixture aerosol type occupies a large region ($0.2 < \eta < 0.8$) and with most of the 't' values being in the neighborhood of the $t=1.39$ curve. Therefore, the three aerosol types in our classification by SDA method can be identified in the α' vs α space.

Different case studies have been reported for α' vs α diagrams. O'Neill (2010), for instance, presented a coarse mode event at the CARTEL AERONET (AEROCAN) site with η values below 0.7 and 't' parameter values confined between 1.39 and 2.15, while a fine mode event was located in the region for which $\eta \geq 0.7$ and 't' values were between 0.55 and 2.15. In a pristine sub-Arctic area, Rodríguez et al. (2012) found that continental and smoke/pollution episodes were located in the upper region of this kind of diagram ($\eta > 0.7$ and 't' values between -0.47 and 2.15) while marine aerosols were located in the $\eta < 0.7$ region. Spectral pairs in the upper (high h) regions of α' versus α plot were also reported by Salinas et al. (2013) for a smoke event in Singapore. The value of $\eta = 0.7$ is somewhat a natural threshold between coarse and fine mode HAT event days. In fact, this value was used to discriminate between different types of mixed classes for HAT episodes that were classified as mixtures (as performed in the next subsection).

Our SDA classification approach (flags of 'F', 'C', and 'M') yields similar classification categories to those of previous studies (e.g., O'Neill, 2010; Rodríguez et al., 2012; Salinas et al., 2013). A total of 641 HAT event days in the period 2005-2014 were identified with this method. There are 297 (46%) event days with HAT in the coarse mode ('C' flag), 233 (37%) in the fine mode ('F' flag), and 111 (17%) simultaneously presenting HAT in both modes ('M' flag).

3.2.2. Identification of 'D', 'MD', 'A', and 'MA' categories.

Once 'C', 'F' and 'M' aerosol types are identified, we need to ensure the source of the aerosol particles if the SDA algorithm is to be compared with the previous C&S inventory. In addition, the mixture predominant types ('MA' or 'MD') can be identified too.

Therefore we added air mass back-trajectory information to the a-priori resulting inventory. Paths followed by air mass trajectories were determined using the HSPYLIT model (see Section 2.2). Possible aerosol sources on the African, European, and American continents as well as local areas were determined for each activated flag. If the first flag is 'C', air masses crossing the African Continent are searched. If the path followed (at any height) crosses Africa, at least 15% of the entire back-trajectory (see Section 2.2), the aerosol source for this air mass is attributed to North African (Saharan

and Sahel) deserts. The presence of coarse particles is then attributed to mineral dust and the final flag is set to 'D'. This kind of methodology has been employed by previous studies on the Iberian Peninsula (e.g., Toledano et al., 2009; Mateos et al., 2015; Cabello et al., 2016). If the first flag is 'F' and the air masses spent at least 15% of their flight time over the European and American Continents (or in the local area), then the fine mode nature of the event is reinforced. Pollution resulting from fine mode aerosols ('A' aerosol type) is then identified with the final flag of 'A' replacing the 'F' flag.

Possible sources are also checked for the mixture conditions associated with the first flag 'M'. Those cases set to the 'M' flag along with an aerosol source in North Africa and showing values of $\eta \leq 0.7$ are interpreted as mixture conditions but with a predominant desert dust contribution (see Figure 1a): their final flag is accordingly set to 'MD' (mixtures with desert dust). If the 'M' flag occurs simultaneously with a fine mode fraction above 0.7, aerosol sources over the American and European continents and local areas are searched. If one of those areas is determined to be the source the final flag for those cases is 'MA' (mixtures with a predominance of fine mode particles).

The main characteristics for the (α, α') space in the first step (HAT identification, Figure 1a) are essentially conserved in Figure 1b: the 'D' classes remain in the 'C' and 'M' regions and the 'A' classes remain in the 'F' and 'M' regions.

With the more restrictive aerosol type classification criteria of the second step, the number of event days has been slightly reduced from 641 to 538 (loss of 103 days). These 538 days of high turbidity are, respectively, sub-classified, into 205, 58, 232, and 43 occurrences of the 'D', 'MD', 'A', and 'MA' flags.

The 103 high turbidity days with no clear air mass trajectory were further studied. A total of 90 out of those 103 event days indicate the presence of coarse particles. This is not directly attributed to air masses crossing over from North Africa, and therefore, they are not classified as 'D'. They retain the 'C' flag (high turbidity in the coarse mode) but are not analysed in this study and do not appear in Figure 1b. These events exceed the nominal HAT conditions for the coarse mode ($P85 AOD_c > 0.05$) but they do not correspond to very large AOD_{500} . For all these 90 cases, the median yielded a value of 0.14. This figure is smaller than the corresponding value obtained for the 'D' category: 0.19. Only 3 event days, initially classified as fine mode HAT episodes, did not meet the air mass criterion and accordingly retained the 'F' flag: these events are not analysed in this study and do not appear in Figure 1b. Finally, 10 event days showing mixture conditions could not, because of the air mass trajectories, be classified as 'MD' or 'MA' and they are omitted in this study.

The result of this automatic algorithm is accordingly the identification and classification of HAT event days when air mass back-trajectory supports the presence of coarse mode dust 'D' or fine mode 'A' aerosol types.

We must call attention that there are event days which are difficult to classify because instantaneous AOD/AE (or AOD_C, AOD_F) values present low or very variable intensity ranging in the edges of the threshold values. An entire day (not instantaneous data) is assigned to an aerosol type, therefore additional information is needed in such cases.

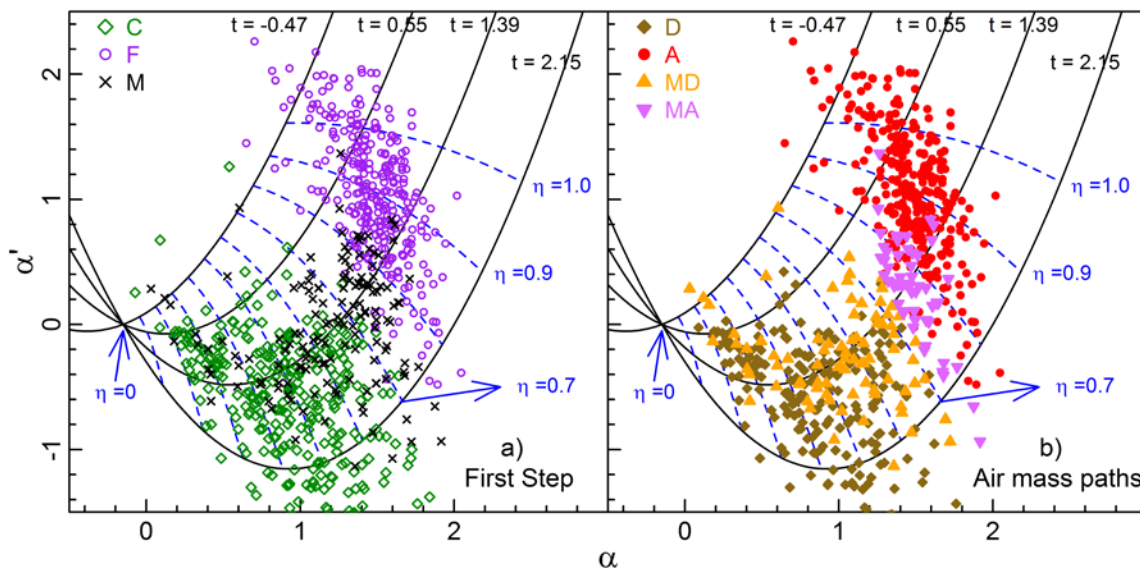


Figure 1. Scatterplots of α' vs α (at 500 nm from SDA algorithm) for different aerosol types: (a) simple classification (three different flags) using the scheme of Section 3.2.1 and (b) classification scheme of Section 3.2.2 considering air mass paths (four different flags). Curvilinear coordinate curves of constant 't' and η are superimposed on the graph (c.f. O'Neill, 2010). These classifications were applied to the entire 2003 to 2014 AERONET database of Table 1.

3.3. Spanish and Portuguese Reference (SPR) method: SPR inventory

The third methodology used for identifying HAT episodes has been extensively reported (Escudero et al., 2005, 2007; Querol et al., 2009; Viana et al., 2010). It is related to surface PM₁₀ data and has been successfully applied to identify African dust outbreaks in particular. This procedure largely assures the identification of African dust episodes, independently of their intensity: it involves the joint interpretation of meteorological products, aerosol maps from model forecasts, satellite imagery and air mass back-trajectories. This inventory also allows for possible time delays of up to 2 days

in PM₁₀ levels after the desert dust intrusion (Pey et al., 2013). This inventory is yearly reported by the Spanish Government (<http://www.mapama.gob.es/es/calidad-y-evaluacion-ambiental/temas/atmosfera-y-calidad-del-aire/calidad-del-aire/evaluacion-datos/fuentes-naturales/>) in order to assess the natural contribution to excessive PM₁₀ concentrations in different sectors of the Iberian Peninsula (Pérez et al., 2018). The European Commission (EC) has adopted this method as the standard for investigating the role of desert dust intrusions over the whole continent (e.g., EC, 2010). The name attributed to this inventory is SPR (the Spanish-Portuguese reference method, following Viana et al., 2010). Among all the available sectors, we concluded the northern sector is the most suitable for the comparison in this study. The northern Iberian Peninsula inventory associated with this third methodology was accordingly downloaded and analysed. A total of 334 dusty days were identified during the 2005-2014 period.

The SPR methodology also determines the episodes of type “A” but these episodes are not based on experimental data, therefore they were not considered in this study for this method. Preliminary results have shown a notable underestimation in the identification of ‘A’ pollution episodes when this methodology is compared with the previous two methods.

4. Comparison of the three different methodologies

4.1. Comparison of detected HAT episodes (2005 – 2014)

The yearly number of ‘D’ and ‘A’ event days identified by the three inventories described in Section 3 are shown in Figure 2. Those days with ‘MD’ and ‘MA’ flags are also added in the bar plots of C&S and SDA methods. Overall, the number of ‘D’ and ‘A’ event days can range, with some exceptions, between 20 and 40 per year. There is no correlation between the year to year time series of ‘D’ and ‘A’ event days, therefore showing a great variability. The number of dusty days per year in Figure 2a shows that the SPR inventory results in more event days than the other two methods. It also shows year 2007 as the one with the largest number of desert dust event days (about 60). The three inventories show 2013 to be the year with the minimum number of desert dust outbreaks (less than 8 days). The largest ‘D’+‘MD’ discrepancy between the SDA and the C&S methodology occurs in 2006. However, as pointed out by Cachorro et al. (2016), no columnar data are available in June and July of that year. The PM₁₀ data in their C&S inventory, enabled the identification of 14 ‘D’ event days along with 13 and 15 ‘MD’ and ‘MA’ days, respectively.

Concerning the fine mode HAT (Figure 2b), the C&S and SDA inventories show good agreement with respect to ‘A’+‘MA’ events.. These two inventories disagree in the identification of the ‘MA’ category in 2006 (because of the same reason explained above in terms of the lack of columnar data) and in 2009. The ‘A’+‘MA’ time series generally

behave in a similar relative way in terms of year to year variability. For 2007 and 2013, there are 'A' event days identified by SDA method which are detected as 'MA' by the C&S analysis, but this fact does not introduce significant discrepancy.

The total counts of 'D'+ 'MD' across the 2005 to 2014 period are 330, 263, and 334 for the C&S, SDA, and SPR inventories, respectively. These numbers indicate, therefore, a mean dusty days ('D'+ 'MD') occurrence of about 7-9% per year. This is in line with previous studies in the same region (e.g., Cachorro et al., 2016). A similar range of occurrence is found for 'A'+ 'MA' event days with a total count of 337 and 275 using C&S and SDA inventories, respectively (7.5-9% of the days).

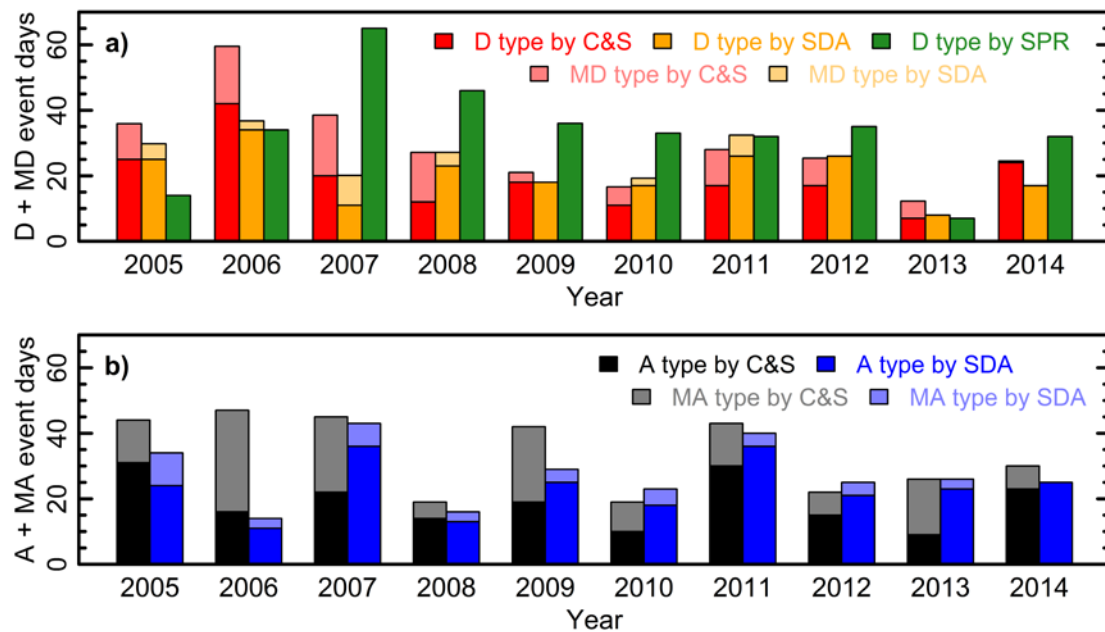


Figure 2. Evolution of the number of 'D' + 'MD' event days (a) for the three inventories used in this study, and 'A' + 'MA' event days (b) for the C&S and SDA inventories between 2005 and 2014.

Overall, there were 67 days of HAT conditions per year in the north-central Iberian Peninsula with roughly the same number of 'D' and 'A' event days. Saharan dust, in the context of unusually high aerosol loads in the western Mediterranean Basin (e.g. Pey et al., 2013; Gkikas et al., 2013) is responsible for the majority of the strongest aerosol episodes (e.g., Gkikas et al., 2016b). However, when a broader analysis of the variability of HAT event day intensity is performed, the roles of both 'D' and 'A' categories are more balanced.

Tables 1 and 2 show detailed comparisons of the three inventories for the four episode types, where the C&S inventory is considered as reference. When a 'D' or 'A' event day in one inventory is classified in the other inventory as one of the two mixture categories ('MD' or 'MA'), both inventories are considered to agree in the identification of HAT conditions. These labelling differences can be understood since the

interpretation of the different aerosol properties using differing criteria can lead to different choices about the predominant type in each aerosol mixture.

The general agreement for those mineral dust outbreaks ('D'+ 'MD' type) in the SDA vs C&S and SPR vs C&S is above 60% and 50%, respectively. The SDA and SPR methods failed to categorize 67 and 71 dusty days identified by C&S while identifies 106 and 212 'D' flags, respectively, which are not in the C&S inventory (c.f. Tables 1 and 2 for more details). The SDA inventory missed 59 of the 67 dusty days because of the lack of columnar data (mostly in 2006, as mentioned above). The other 8 cases correspond to a lack of SDA retrieval data (2 days), no clear identification of air mass trajectory (2 days), and days in the beginning/ending of particular episodes (which were attributed to the 'D' type during the C&S visual inspection of instantaneous values) with an AOD_c below the threshold (4 days). In the SPR vs C&S comparison, the SPR method failed to identify 71 'D' event days. On 2 days SPR had no data (statistically negligible over 10 years). The other 69 days were characterized by mean values of $PM_{10} = 21 \pm 16 \mu\text{g}/\text{m}^3$ and $AOD_{DS,440\text{nm}} = 0.27 \pm 0.12$.

The comparison of 'D' results was also performed at different $AOD_{DS,440\text{nm}}$ and PM_{10} intervals in order to investigate if the discrepancies/similarities between inventories could be better understood by employing stratified criteria (only the subset of 'D' days for which both $AOD_{DS,440\text{nm}}$ and PM_{10} data were available are analysed here). The SDA vs C&S comparison yielded perfect agreement (100% classification accuracy) for strong intrusions. These are defined by the mean + 2 standard deviations of the dataset (Bennouna et al., 2016): $AOD_{DS,440\text{nm}} > 0.3$ and $PM_{10} > 28 \mu\text{g m}^{-3}$. There is a source of discrepancy between them, however, for desert dust intrusions associated with weaker AODs / mass concentrations ($AOD_{DS,440\text{nm}} < 0.3$ and $PM_{10} < 28 \mu\text{g m}^{-3}$). About 8% of the C&S 'D' event days are not identified by the SDA in this $AOD_{DS,440\text{nm}} / PM_{10}$ range (the classification match is nevertheless 92%). It is worth noting that detection of weak to moderate intensity episodes is very difficult since the dust fingerprint can be masked. The SPR vs C&S comparison shows perfect agreement for the strongest intrusions ($AOD_{DS,440\text{nm}} > 0.5$ and $PM_{10} > 28 \mu\text{g m}^{-3}$), but the identification of dusty days is problematic even for cases with large $AOD_{DS,440\text{nm}}$ (> 0.3) because they show $PM_{10} < 28 \mu\text{g m}^{-3}$. About 30% of the total dusty days included in the C&S inventory are not identified by the SPR method in these $AOD_{DS,440\text{nm}}$ and PM_{10} ranges.

It is remarkable that the large number of 'D' event days not in the C&S reference inventory but identified by the SDA and SPR methods (Tables 1 and 2) are characterized by relatively low aerosol loads. These days, therefore, do not have important impact on the determination of the dust contribution to the total load (in AOD or PM_{10}). The 106 dusty days added by the SDA method are characterized by mean $PM_{10} = 12 \pm 7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ and $AOD_{DS,440\text{nm}} = 0.15 \pm 0.03$ ($AE_{DS} = 0.8 \pm 0.2$) while the mean for the 212 dusty days added by the SPR method are $PM_{10} = 12 \pm 7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ and $AOD_{DS,440\text{nm}} = 0.13 \pm 0.05$ (AE_{DS}

= 1.1 ± 0.4). For a particular case of low aerosol load, November 15th, 2012 with $PM_{10} = 8 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $AOD_{DS,440\text{nm}} = 0.15$ ($AE_{DS} = 0.62$), and the SDA retrievals at 500nm $AOD_F = 0.043$ and $AOD_C = 0.064$. These conditions are non-high turbidity in the C&S and SPR inventories. But the AOD value in the coarse mode is larger than the threshold for HAT conditions in the SDA inventory and this day is classified as 'D' because of the air mass trajectories. This kind of discrepancies do not occur for intense episodes, but the identification of those event days with moderate to low intensity can differ depending on the followed method or the measurement technique.

Table 1. Comparison of HAT event days identified using the C&S methodology with those using the SDA method (2005-2014 period). The classification (categorization) accuracy for HAT event days common to the C&S and SDA inventories is the "Categorized as" column entry: highlighted in bold font those categories that can be interpreted as good agreement.

Category in C&S	Total C&S	Category in SDA				
		D	MD	A	MA	No event
D	193	99	26	1	0	67
MD	137	29	24	23	21	40
A	189	0	0	127	5	57
MA	148	10	6	47	16	69
No event	2985	67	2	34	1	2881
Total SDA		205	58	232	43	3114

Table 2. Comparison of HAT event days identified using the C&S methodology with those using the SPR method (2005-2014 period). The classification (categorization) accuracy for HAT event days common to the C&S and SPR inventories is the "Categorized as" column entry: highlighted in bold font those categories that can be interpreted as good agreement.

Category in C&S	Total C&S	Category in SPR		
		D	MD	No event
D	193	122	-	71
MD	137	47	-	90
No event	2985	212	-	2773
Total SPR		381	-	2934

With respect to 'A' flags, the general agreement between the C&S and SDA methods is about 70%, but the SDA identifies 105 event days that are not in C&S. Six out of 57 unidentified 'A' event days are due to the lack of columnar data. A total of 29 days out of the remaining 51 event days show an AOD_F value very close to the established threshold (i.e. their values are found to be in the 0.10-0.12 interval). The 51 unidentified 'A' event days represent AOD_F values between the first and third quartile (0.077 and 0.114, respectively). Therefore, the AOD_F is relatively low compared to the P85 threshold, but the instantaneous $AOD_{DS,440nm}$ can display a larger value that can be considered as HAT conditions when the C&S visual inspection is carried out. This comparison was also carried out for the above-mentioned PM_{10} and $AOD_{DS,440nm}$ intervals, for those days with both types of data being available. As in the case of the 'D' category results, there was a very good agreement of 95% for the strong episodes ($AOD_{DS,440nm} > 0.3$ and $PM_{10} > 28 \mu g m^{-3}$). For moderate episodes ($AOD_{DS,440nm} < 0.3$ and $PM_{10} < 28 \mu g m^{-3}$), about 25% of the 'A' event days in C&S are not identified by the SDA method.. Most of the discrepancies (unidentified days) are observed at the beginning/ending of each event when the impact on aerosol load is weak. A visual inspection of these particular days showed 2 long-lasting episodes, of about 3-4 consecutive days each, as the only major discrepancies between the inventories. The AOD_F values during these days were slightly smaller than the required SDA HAT threshold. The large number of 'A' event days identified by the SDA and not in C&S are not characterized by high aerosol load levels ($PM_{10} = 10 \pm 3 \mu g/m^3$, $AOD_{DS,440nm} = 0.21 \pm 0.07$, and $AE_{DS} = 1.6 \pm 0.2$) and they present a minor impact on the determination of the 'A' contribution to the total aerosol load.

When there is availability of columnar AOD data, the automatic SDA method can provide reliable identification of HAT event days for 'D' and 'A' aerosol types. However, if there is a lack of AOD columnar data, the surface aerosol load should be taken into account in order to have a reliable inventory. The use of only surface data (together with ancillary information) presents some uncertainties for strong turbidity episodes, because long-range transported aerosol can remain in high tropospheric layers and have low impact at the surface, and hence a time lag (one or two days) is required for sedimentation process and thus for increasing PM_{10} values.

4.2. Case Study: example of the year 2014

In order to better show how the three methodologies work, particular examples of 'D', 'MD', 'A', and 'MA' event days that occurred in 2014 are shown in Figure 3. This year was selected because it presents moderate occurrence of HAT days, with a minor incidence of 'MD' episodes and it is illustrative of the problems encountered in this comparative analysis.

With respect to desert dust outbreaks, three long events (lasting more than three days in April, October and November) and a total of 24 dusty days are identified in the C&S inventory. A smaller number (a total of 17) is found in the SDA inventory. With respect to the SPR inventory, its total of 31 dusty days is notably augmented compared with the C&S counts by a particularly long episode (11-17 April 2014). This episode is a good illustration of the challenges associated with the discrepancies that can result from the different HAT categorization schemes. The episode is not identified in the same way by the other algorithms, where only two days (12-13 April 2014) are flagged as 'MA' category for C&S while the SDA flagged one 'D' and one 'A' category. However, as it can be observed in Figure 3, the beginning of this period is identified as a dusty day by both C&S and SDA inventories (4 October 2014: $AOD_c=0.10$ and $PM_{10} = 17 \mu\text{g}/\text{m}^3$). The columnar aerosol load for this long episode can only be considered as "high turbidity" on the two days mentioned before (12-13 April 2014), while the surface PM_{10} concentrations on those two days were low (between 9 and $12 \mu\text{g}/\text{m}^3$).

The three algorithms simultaneously agree in the identification of HAT mineral dust events in 12 out of 24 C&S 'D' flags in 2014. One possible reason behind this relatively low classification match could be the weak intensity of desert dust outbreaks for this year with mean (median/maximum) $AOD_{DS,440\text{nm}}$ and PM_{10} values of 0.18 (0.16/0.35) and 24 (21/42) $\mu\text{g}/\text{m}^3$, respectively. The use of fixed and automatic thresholds can underestimate the frequency of mineral dust identification. However, this shortcoming is relatively minor since the analysis of ancillary information is the key that leads to the identification of desert dust aerosols for low intensity events.

An unusual and long period of high turbidity occurred between 23rd and 30th October, 2014. A visual inspection of all the available information associated with this extended desert dust event gives a global perspective (C&S and SPR) while the automatic algorithm (SDA) only identifies certain days. The days classified in the 'D' category by the C&S method but not identified by the SDA are those days with no available columnar data (e.g., cloudy conditions throughout the day) so that the C&S classification was carried out using only PM_{10} values. Although the month of October was not, within the context of a multi-year perspective, affected by a large number of desert dust intrusions over our study region (Cachorro et al., 2016), it does represent a monthly maximum of dusty days for 2014 with 11 'D' event days plus one 'MD' (as per the C&S method). The aerosol load levels during this month ranged between 0.09 and 0.27 for $AOD_{DS,440\text{nm}}$ and between 18 and $42 \mu\text{g}/\text{m}^3$ for PM_{10} .

The C&S identification of urban-industrial and biomass burning in 2014 indicated 23 'A' days (plus 7 'MA' days), while 25 'A' days were identified using the SDA method. These two inventories have 21 'A'+ 'MA' episodic days in common. For instance, the 'A' flag reported by C&S on July 4th, 2014 is not corroborated by SDA method (although, we would point out that the AOD_F value is very close to the HAT threshold; $AOD_F = 0.115$,

the P85 threshold is 0.12). The identification of 'A' event days by using only surface data seems problematic because of the weaker impact of this kind of fine particle events on PM₁₀, as mentioned above. For instance, during all 'A' and 'MA' events of 2014 the maximum PM₁₀ concentration is 22 µg m⁻³, while the maximum AOD_{DS,440nm} is 0.36. This emphasizes the different sensitivities of AOD_{DS,440nm} and PM₁₀ to the detection of desert and 'A' episodes (e.g., Cabello et al., 2016).

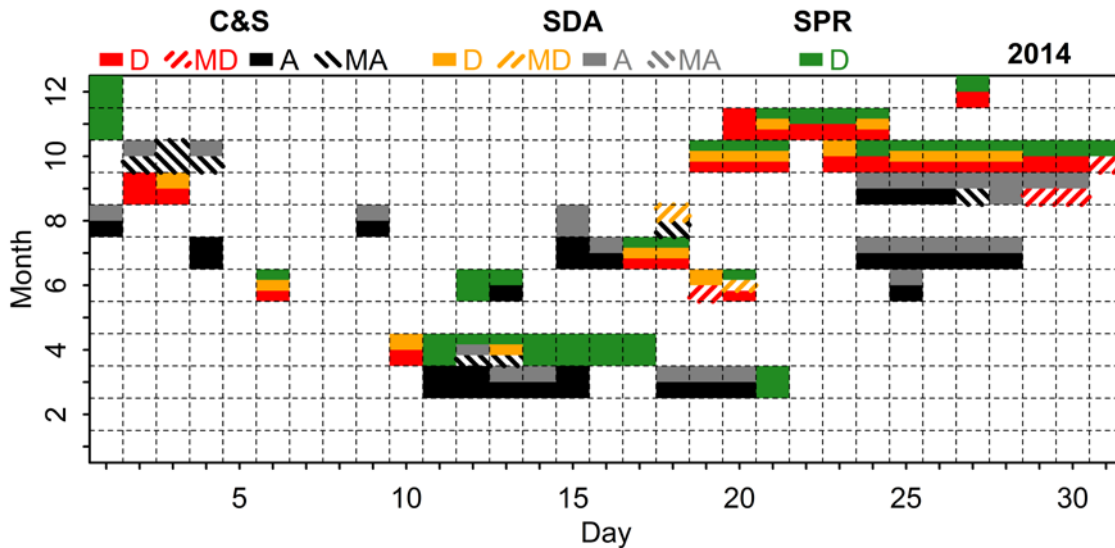


Figure 3. Inventory of 'D', 'MD', 'A', and 'MA' event days in 2014 identified by three different methodologies.

4.3. Sensitivity of using 85th percentile in the SDA method

The application of 85th percentiles to SDA-derived AOD_C and AOD_F values has proven to be a good tool for high turbidity identification. One might ask whether the use of other percentiles could also lead to a reliable means of identifying aerosol episodes. In this section, the sensitivity of the proposed percentile methodology is accordingly studied. The 80th, 85th, and 90th percentiles are chosen for this sensitivity test of high turbidity identification. Table 3 presents the values of the corresponding thresholds applied to the Palencia database for the 2005-2014 period.

Table 3. 80th to 90th percentiles for AOD_F and AOD_C series for 'Palencia' AERONET site database (2005-2014 period).

Percentile	AOD _F	AOD _C
80 th	0.10	0.04
85 th	0.12	0.05
90 th	0.15	0.07

The methodology for this test is the same as explained above (see Section 3.2.1). Bear in mind that only data of AOD_C and AOD_F are necessary to identify 'C', 'F', and 'M' categories, first step of SDA inventory.

The results of the HAT identification using 80th, 85th, and 90th percentiles are compared in Figure 4 with the 'C&S' identification method (considered as reference). The 90th percentile threshold exhibits the best agreement (81% of coincidence) between C&S and SDA inventories in the 'D' vs 'D' comparison. The use of 85th and 80th percentiles reduces the agreement in the 'D' vs 'D' case but notably increases the 'D' vs 'M' case with a total agreement of 94-96% for this type of episodes.

With respect to the fine-mode dominated cases, little change is observed by changing from 80th to 85th percentile thresholds with an agreement about 70% in the 'A' vs 'A' comparison. The use of 80th percentile identifies a larger number of 'A' event days in the 'M' category which are attributed to non-turbid ('NT' flag) cases with the use of the 85th percentile. All these cases are associated to values close the thresholds (between 0.10 and 0.12, see Table 3). The agreement is notably smaller for the 90th percentile analysis. Accordingly, the use of a large threshold (90th percentile), results in weaker events ($AOD < 0.15$) being misclassified as 'NT' category.

The two aerosol mixture categories 'MD' and 'MA' present similar features with respect to the threshold variation. There is a high agreement with the SDA inventories using 80th and 85th percentiles: 91-88% and 93-74%, respectively. The use of the 90th percentile reduces the percentage agreement to ~50%.

We assume that a day classified as a HAT event by the SDA ('C', 'F', or 'M') represents good agreement when it corresponds to a C&S classification of 'D', 'MD', 'MA', or 'A'. The only SDA event days that get lost, in accounting for changes from one percentile to another, are those which are transferred to the 'NT' category. The use of 80th percentile yields an 88-97% agreement range for the four categories of the C&S inventory (the "agreement" being the sum of the 'D', 'M', 'A' % values for each of the four categories). The lower limit of this range decreases moderately to 73% and the upper limit is 95% for 85th percentile. The 90th percentile yields minimum values for both the lower and upper bounds of the range (48-89%). The fact that the automatic SDA algorithm accepts more HAT event days with decreasing percentile can imply a larger uncertainty with significantly greater numbers of false positives. For instance, the "D" identification for the smaller percentile (80th percentile) yields 245 HAT attributions. This number gets reduced to 145 and 58 for 85th and 90th percentile thresholds, respectively.

The use of any one of the three percentiles as threshold can be justified depending on the objective of the study. For our purposes, the 85th percentile was the most adequate option: this enables an acceptable balance between the assured identification

of high intensity episodes and the inclusion of a moderate number of weak intensity episodes.

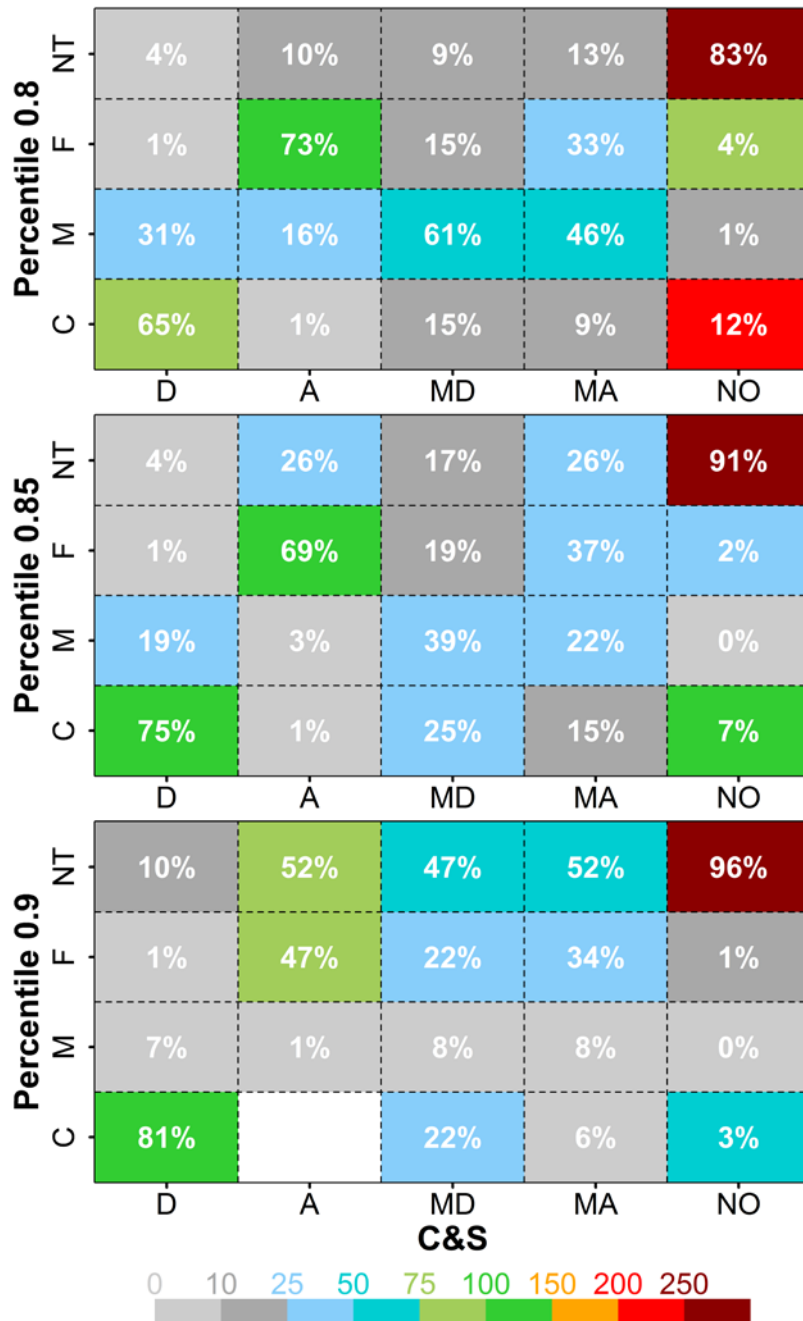


Figure 4. Identification of HAT episodes using the ‘SDA’ percentile method (80th, 85th and 90th percentiles; see text). The “C&S” inventory is used as reference. The colour scale quantifies the total number of identified HAT event days (values larger than 250 are saturated). The percentage agreement is given for each category (numbers in white text). The reader should keep in mind that, for each of the three percentile cases, the

total number of events for a given C&S class is conserved (the sum of the superimposed percentages is $100\% \pm$ a rounding error).

5. Summary and Conclusions

To our knowledge, this is the first time that three aerosol inventories, dedicated to the identification and classification of high atmospheric turbidity events, have been compared. These inventories are based on different methodologies which make use of different types of aerosol data (columnar aerosol AOD data and surface PM₁₀ data) while sharing similar ancillary information sources (air mass back-trajectory analysis, satellite imagery, aerosol models, etc.). The comparison is carried out for three aerosol types: coarse aerosol type, represented by mineral desert dust aerosol transported from the African continent; fine aerosol type, basically biomass burning aerosols from forest fires and anthropogenic aerosols transported from central Europe, the Mediterranean Basin or other regions of the Iberian Peninsula (long-range transported smoke from Canada has also been detected). A mixture of these two main aerosol types in the identified high atmospheric turbidity conditions was also investigated. Bear in mind that our region of study in the north-central Iberian Peninsula is a clean continental area.

The results of the comparison suggest that the simultaneous use of columnar (remote sensing) and surface (in situ) ground-based aerosol data provides the most reliable inventory. With this combined datasets, the impact of boundary layer to high-altitude atmospheric layers is taken into consideration given the high probability of at least one type of data being available: this capability eventually increases the probability of aerosol event detection. It is obvious that each aerosol database, columnar or surface, has its advantages and limitations. For instance, columnar aerosol data are based on direct sun irradiance measurements for which the sky must be cloud free in the direction of the sun: this results in significant duty cycle problems for cloudy sites. Conversely, PM₁₀ measurements are not constrained by the sky conditions but do not allow the detection of events in the upper troposphere. The PM data analysis method requires a human observer to gather multiple information sources and its implementation in large areas with several sites can be very time consuming. This method can certainly be partially automated because it is mainly based on threshold values of physical measured/derived quantities, but initial results have shown that it is not as reliable as a measurement system supported by human observations, decisions and interpretations. Also, note that the implementation of the complementary information required for the identification of aerosol mixtures (MD or MA), is not an easy task because of the complex nature of the information and the decision process.

Given the drawbacks of all current existing methodologies, there are strong reasons to implement an inventory that is as automated as possible. The results of this study

lead us to propose, as an alternative to the more labour intensive current approaches, an automated method based on the analysis of the fine and coarse mode AOD. The AOD_F and AOD_C parameters are found to be more powerful discriminators than the combination of single wavelength AODs and alpha parameters. It can also be expected that classification methods based on thresholds applied to different variables may yield to different classifications, especially for weak events. The agreement has been shown to be nearly perfect for strong events.

The AOD_F and AOD_C are standard AERONET SDA products. The proposed approach permits the identification of high atmospheric turbidity (HAT) event days characterized as fine, coarse or mixed mode. This method requires the establishment of thresholds which serve as the basis for HAT identification. The results of this study led to the use of the 85th percentile as a suitable threshold for both fine and coarse mode aerosol events. A sensitivity test to various thresholds demonstrated that significant changes in classification occurred only for event days with low AOD. Because HAT identification is primarily of concern in the presence of high AOD events, these low intensity cases have a minor impact. The proposed methodology can be readily adapted to near real-time HAT identification applied to the new AERONET Version 3.0 products. Those products incorporate improved cloud-screening capabilities that facilitate near-real-time data analysis.

Acknowledgements

The authors are grateful to the Spanish Ministry of Science, Innovation and Universities for the support through the ePOLAAR project (RTI2018-097864-B-I00). Thanks are due to EMEP (especially to MAGRAMA and AEMET) and AERONET-PHOTONS RIMA staff for providing observations and for the maintenance of the networks.

SUPPLEMENTARY MATERIAL

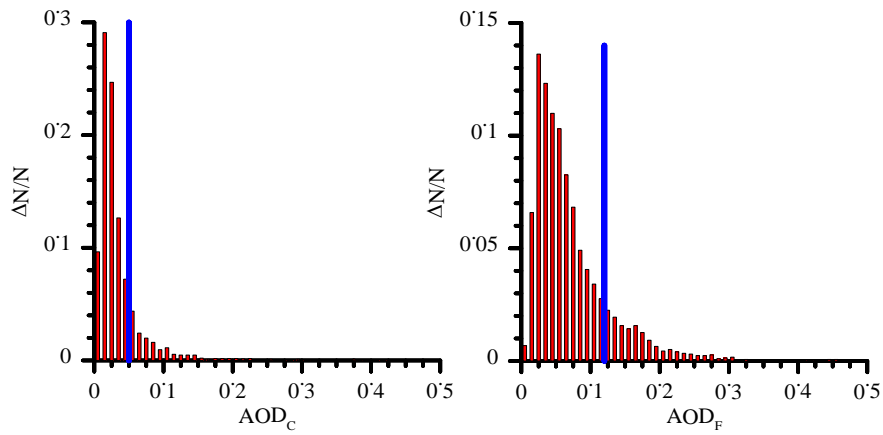


Figure S1. Histogram of AOD values for the coarse and fine modes at Palencia site. Vertical lines point out the P85 value used as threshold.

References

See references section of the PhD Thesis

Capítulo 5. Sun photometer retrievals of Saharan dust properties over Barbados during SALTRACE

Resumen

Dado que el polvo mineral es uno de los principales contribuyentes de aerosoles a la atmósfera (ver final de la Sección 2.6), que sus efectos son muy importantes en el clima (debido a su interacción con la radiación solar), y que el desierto del Sahara es la principal fuente de polvo desértico en el hemisferio norte, es de gran relevancia estudiar tanto sus propiedades como su transporte a lo largo del planeta. Hay muchos estudios acerca del transporte de polvo mineral procedente del Sahara en Europa y hacia el continente americano (Prospero y Carlson, 1972; Prospero, 1999) aunque aún no se llega a conocer con exactitud la modificación de sus propiedades a lo largo de su transporte sobre el Océano Atlántico.

Este capítulo trata sobre el estudio de las propiedades del polvo desértico procedente del desierto del Sahara en diferentes localizaciones del Caribe durante la campaña de medidas durante los meses de junio y julio de 2013 denominada '*Experimento de Transporte de Largo Alcance e Interacción-Aerosol-Nube de polvo con origen en el desierto del Sahara (SALTRACE)*'. Para hacer posible el análisis minucioso de la detección y estudio del aerosol de origen Sahariano en el Caribe, fueron utilizados un amplio conjunto de instrumentos de medida de aerosoles en tierra y en el aire instalados a lo largo de la isla de Barbados, de manera que se pudiese lograr unos resultados completos y profundos.

La aportación del Grupo de Óptica Atmosférica a dicha campaña de medidas fueron dos fotómetros solares CIMEL (ver Sección 3.1.2) de la red AERONET. Estos fotómetros se situaron junto a dos lidar (ver Sección 3.2.2) de varias longitudes de onda (BERTHA y POLIS) y un radiómetro de sol y cielo (SSARA).

Dada la disposición de toda la instrumentación se han podido analizar las propiedades de los aerosoles derivadas de las observaciones directas de la radiación solar y del cielo, y se ha podido realizar una comparación con los datos in situ y lidar para la misma ubicación. Por un lado, la serie temporal de espesor óptico de aerosoles permite identificar sucesivos eventos de polvo con cortos períodos intermedios en los que se observaron las condiciones de fondo (aerosol marino), obteniendo unos valores de AOD moderados, en el rango de 0.3-0.6 durante los episodios de polvo. Por otro lado, se ha podido observar que la dependencia espectral del AOD no sigue la ley de la potencia de Ångström, especialmente en el infrarrojo de onda corta para aerosoles de polvo mineral (Toledano et al., 2011). De este modo, se ha podido utilizar el canal de 1640 nm de los fotómetros para investigar posibles mejoras en la medida de del tamaño del aerosol debido a la esperable mayor sensibilidad a las partículas gruesas.

La comparación entre los datos en columna de espesor óptico y la concentración de polvo en superficie demuestra la conexión entre la capa de aire sahariana y la capa límite en la región del Caribe, como lo indica la detección sincronizada de los sucesivos eventos de polvo en ambos conjuntos de datos. Sin embargo, las diferencias en las distribuciones de tamaño derivadas de los datos del fotómetro solar y las observaciones in situ revelan las dificultades para llevar a cabo lo que se denomina un experimento de “cierre” o “closure”, en el que se puedan conciliar las medidas de superficie y de columna.

Artículo 2. Sun photometer retrievals of Saharan dust properties over Barbados during SALTRACE

Carlos Toledano¹, Benjamín Torres², Cristian Velasco-Merino¹, Dietrich Althausen³, Silke Groß⁴, Matthias Wiegner⁵, Bernadett Weinzierl⁶, Josef Gasteiger⁶, Albert Ansmann³, Ramiro González¹, David Mateos¹, David Farrel⁷, Thomas Müller³, Moritz Haerig³, and Victoria E. Cachorro¹

¹Group of Atmospheric Optics, University of Valladolid, Valladolid, Spain

²Laboratory of Atmospheric Optics, University of Lille, Villeneuve d’Ascq, France

³Leibniz Institute for Tropospheric Research, Leipzig, Germany

⁴German Aerospace Center, Institute of Atmospheric Physics, Oberpfaffenhofen, Germany

⁵Meteorological Institute, Ludwig Maximilians University, Munich, Germany

⁶Aerosol Physics and Environmental Physics, University of Vienna, Vienna, Austria

⁷Caribbean Institute for Meteorology and Hydrology, Bridgetown, Barbados

Correspondence: Carlos Toledano (toledano@goa.uva.es)

Abstract. The Saharan Aerosol Long-range Transport and Aerosol-Cloud-Interaction Experiment (SALTRACE) was devoted to the investigation of Saharan dust properties over the Caribbean. The campaign took place in June-July 2013. A wide set of ground-based and airborne aerosol instrumentation was deployed at Barbados island for a comprehensive experiment. Several sun photometers performed measurements during this campaign: two AERONET Cimel sun photometers and the Sun and Sky Automatic Radiometer (SSARA). The sun photometers were co-located with the ground-based

multi-wavelength lidars BERTHA and POLIS. Aerosol properties derived from direct sun and sky radiance observations are analyzed, and a comparison with the co-located lidar and in-situ data is provided. The time series of aerosol optical depth allows identifying successive dust events with short periods in between in which the marine background conditions were observed. Moderate aerosol optical depth in the range 0.3 to 0.6 was found during the dust periods. The sun photometer infrared channel at 1640nm wavelength was used in the retrieval to investigate possible improvements to aerosol size retrievals and expected larger sensitivity to coarse particles. The comparison between column (AOD) and surface (dust concentration) data demonstrates the connection between the Saharan Air Layer and the boundary layer in the Caribbean region, as it is shown by the synchronized detection of the successive dust events in both data sets. However the differences of size distributions derived from sun photometer data and in-situ observations reveal the difficulties to carry out a column closure study.

1 Introduction

Mineral dust is a major contributor to natural aerosol particles. The Sahara desert is the main source of natural dust in the northern hemisphere (Goudie and Middleton, 2001). Mineral dust has important effects on climate due to its interaction with solar radiation (Liao and Seinfeld, 1998) and its contribution to modify cloud properties and processes (Tang et al., 2016). It is largely known that dust originated in the Sahara desert is transported across the Atlantic Ocean to the Caribbean (Prospero and Carlson, 1972; Prospero, 1999). Thus, Saharan dust affects vast areas although the modification of properties and effects along this transport over the Atlantic ocean are still not well understood.

The understanding of all the complex phenomena taking place in the Saharan Air Layer (Carlson and Prospero, 1972) can only be tackled with a combination of long-term observations of key variables using ground-based, airborne and satellite techniques, and comprehensive field experiments that include multiple state-of-the-art instrumentation and a synergistic analysis including the necessary link to the modeling efforts (Tegen, 2003; Heinold et al., 2011; Gasteiger et al., 2017). A list of field experiments undertaken in the last decade aiming at the characterization of mineral dust is provided by Weinzierl et al. (2017).

Sun photometer observations within the Aerosol Robotic Network (AERONET, Holben et al., 1998) provide long-term observation of the atmospheric aerosol at global scale. In the Caribbean, AERONET observations have been carried out since 1996 at Barbados. A number of sites have incorporated to the program in the last decade. A list of sites and available measurements is provided by Velasco-Merino et al. (2018) as well as on the AERONET website. Furthermore, ground-based in situ observations of Saharan dust are

carried at Barbados since 50 years. The Barbados dust record (Prospero et al., 2014) started in 1965 and is the longest existing record of ground-based dust measurements. Both AERONET data and ground-based dust concentrations allow us evaluating the SALTRACE data in a long-term context. These data indicate that dust conditions during the SALTRACE observation period in summer 2013 were 'typical' (Weinzierl et al., 2017).

The Saharan Aerosol Long-Range Transport and Aerosol-Cloud-Interaction Experiment (SALTRACE, Weinzierl et al., 2017) took place in Barbados in 2013-14. The first observation period of SALTRACE was conducted in the Caribbean region in June-July 2013. Two other observation periods were carried out in spring and summer 2014. The aim of this experiment was to collect a wide set of ground-based and airborne-based measurements of long-range transported Saharan dust, in order to provide a unique dataset comprising in-situ and remote sensing derived aerosol and cloud variables. These data will allow analyzing to what extent aged mineral dust changes its properties during transport and how these particles play a role in cloud processes in the Caribbean area.

This experiment is closely connected with the Saharan Mineral Dust Experiment (SAMUM, Heintzenberg, 2009; Ansmann et al., 2011), that was carried out in the vicinity of the Saharan desert and at the beginning of the long-range transport over the Atlantic, in the Cape Verde islands. In fact most of the instrumentation (ground-based and airborne) was consecutively deployed at Morocco (SAMUM-1), Cape Verde (SAMUM-2) and finally Barbados (SALTRACE). During this time, instruments and retrievals have been continuously improved in order to reduce experimental uncertainties and provide the best possible data. Some examples of these efforts in the field of remote sensing are the use of complex shapes in the modeling of particles and inversion of lidar data (Gasteiger et al., 2011) or the improvements in polarization measurements from lidar, with the development of enhanced calibration schemes (Freudenthaler et al., 2009; Freudenthaler, 2016), enhanced instrumentation and extended spectral range (Gasteiger and Freudenthaler, 2014; Groß et al., 2015; Haarig et al., 2017). The AERONET version 3 processing algorithm (Giles et al., 2019) is another example as it provides enhanced retrieval of basic properties, like the aerosol optical depth, as well as advanced characterization of aerosol optical properties. At the same time, it improves the cloud-screening and quality control algorithms.

The aim of this paper is to analyze the sun photometer observations carried out during SALTRACE, and relate them to the co-located aerosol measurements. Section 2 describes the measurement sites and instrumentation involved in this study. Then the methodology is briefly described in section 3 and the results are presented in section 4, including aerosol optical depth, inversion products and a comparison with in-situ observations.

2 Sites and instrumentation

The measurements presented in this paper were collected at two sites, both located in Barbados. The first one was set at the headquarters of the Caribbean Institute for Meteorology and Hydrology (CIMH), in the western part of Barbados (13°815511 N, 59°3712911 W; 110 m a.s.l.). The AERONET measurements in this location can be found under the site name “Barbados SALTRACE”. The CIMH was a supersite for SALTRACE. This site contains several remote-sensing instruments such as two AERONET sun photometers, the SSARA (Sun and Sky Automatic Radiometer) sun–sky radiometer (Toledano et al., 2009), and the lidar systems POLIS (Portable Lidar System) (Groß et al., 2015, 2016) and BERTHA (Backscatter Extinction lidar Ratio Temperature Humidity profiling Apparatus) (Haarig et al., 2017), together with ancillary data from meteorological radiosondes and a handheld Microtops for ozone measurements. CIMH is located on a small hill, 1.5 km away from the coast, in the vicinity of the city of Bridgetown, with about 100 thousand inhabitants.

The second site was located in Ragged Point (13°915411 N, 59°2515611 W; 40 m a.s.l.), on the eastern coast of Barbados and 25 km away from CIMH. At Ragged Point in situ instrumentation was deployed in a measurement tower, including samplers and optical instrumentation for the derivation of dust optical, chemical and micro-physical properties at ground level (Kristensen et al., 2016; Kandler et al., 2018). This is the regular measurement site of the 50-year Barbados dust record mentioned above. Given the privileged location of Barbados as the easternmost island of the Caribbean, it makes it possible to measure undisturbed African dust after its long-range transport over the Atlantic. An AERONET sun photometer is also operated on a continuous basis at Ragged Point. A comprehensive list of instruments at the CIMH and Ragged Point sites during SALTRACE can be found in the supplemental material of Weinzierl et al. (2017).

The sun photometers had different features and were operated at different configurations in order to cover as many aspects as possible. Two AERONET Cimel sun photometers (Holben et al., 1998) were operated at CIMH during SALTRACE. Table 1 summarizes the spectral ranges, measurement types and frequencies performed by each sun photometer. These instruments perform direct sun observations at nine spectral channels in the range 340–1640 nm plus sky radiance in six channels (440, 500, 675, 870, 1020 and 1640 nm) in the principal plane and almucantar geometries. In order to optimize the observations, one of the Cimel sun photometers was set to make high-frequency (3 min sampling) measurements for aerosol optical depth observations; and the other one, equipped with polarization capabilities, was focused on the measurement of sky radiances, especially sky polarization in the principal plane geometry.

The SSARA sun–sky radiometer performs continuous direct sun observations at 12 spectral channels ranging from 340 to 1550 nm. Sky radiances in the solar almucantar

and principal plane geometries are measured every 30 min at 440, 780 and 1020 nm. For this campaign new polarization capabilities were added to SSARA (therefore renamed “SSARA-P”) in order to derive the degree of linear polarization (DOLP) of the sky light at the 500 nm wavelength.

The ground-based in situ aerosol measurements included in the present study were carried out at the Ragged Point site. The ambient aerosol was sampled through a PM10 inlet located at the top of a 17 m high tower, ca. 50 m a.s.l. The particle number size distributions were measured every 14 min with an Aerodynamic Particle Sizer (APS-3321, TSI) covering the size range 0.5–10 μm , and a mobility particle size spectrometer (MPSS, TROPOS-REF-3) measuring the size range 0.01–0.8 μm was used (Kristensen et al., 2016). As for the lidar instrumentation, POLIS is a six-channel lidar system measuring Raman (387 and 607 nm) and elastic (355 and 532 nm, cross and parallel-polarized) backscattered signals for aerosol property profiling (Groß et al., 2015). BERTHA is a multi-wavelength polarization and Raman lidar upgraded for this campaign with new channels to allow for the observations of dust linear depolarization ratios at 355, 532 and 1064 nm (Haarig et al., 2017). For further information concerning the lidar and in situ data used in this study, we refer the reader to the corresponding publications in the special issue (Groß et al., 2015, 2016; Kristensen et al., 2016; Haarig et al., 2017, ; see a complete list at https://www.atmos-chem-phys.net/special_issue382.html) as well as previous studies using this instrumentation (Wiegner et al., 2011; Tesche et al., 2011; Müller et al., 2011; Schladitz et al., 2011).

3 Methodology

All sun photometer observations were made following the AERONET protocols, i.e., high-frequency (see Table 1) direct sun observations to derive spectral aerosol optical depth and sky radiance measurements every hour in the almucantar and principal plane geometries.

All Cimel instruments involved in the campaign were calibrated following AERONET procedures (Holben et al., 1998); therefore the AOD absolute uncertainty is 0.01–0.02 (larger for shorter wavelengths), and the sky radiance uncertainty is 5 %. Similar uncertainty is found for SSARAP (Toledano et al., 2011). Its direct sun channels for AOD were calibrated with the Langley plot method at the Environmental Research Station Schneefernerhaus (2650 m a.s.l. at the Zugspitze, Germany); radiance and polarization channels were calibrated at the University of Lille (accessed thanks to the ACTRIS-2 project; Aerosol, Clouds and Trace Gases Research Infrastructure) using the AERONET-Europe reference integrating sphere and polarization box (Li et al., 2018).

The data processing is also standardized. For aerosol optical depth we have used cloud-screened and quality-assured (level 2.0) data from AERONET Version 2 database.

However the differences in AOD with the newer Version 3 (Giles et al., 2019) are minor (below 0.003 in all wavelength channels for any measurement). The use of the Version 2 AOD is chosen for a better comparison with the previous sun photometer results of the SAMUM campaigns (Toledano et al., 2009, 2011).

For the inversion of the sky radiances, we have self applied the inversion code by Dubovik et al. (2006) to both the almucantar and principal plane geometries using the four spectral channels that are used in the operational AERONET processing, i.e., 440, 675, 870 and 1020 nm wavelengths. We also performed alternative processing by adding the observations at the 500 and 1640 nm wavelengths, therefore enlarging the observation spectral range in the shortwave infrared. The differences provided by this enhanced retrieval will be shown in Sect. 4.2. Neither the principal plane retrievals nor the six-wavelength retrievals are available in the AERONET database.

In the AERONET operational products, only retrievals with an AOD (440 nm) of > 0.4 can be considered “quality assured”. In our case, we have applied a set of quality criteria to ensure the reliability of our inversion data, which basically are the same conditions of AERONET level 2.0 inversions except for the AOD threshold, i.e., a solar zenith angle of $> 50^\circ$, a minimum number of symmetrical angles and a retrieval error between 5 % and 8 % depending on the AOD. We also impose an AOD (440 nm) of > 0.2 for the singlescattering albedo and complex refractive index (Dubovik et al., 2006; Mallet et al., 2013; Mateos et al., 2014; Burgos et al., 2016; Velasco-Merino et al., 2018). This threshold of AOD (440 nm) > 0.2 results in an estimated uncertainty of 0.03 for the single-scattering albedo, 0.04 for the real part of the refractive index, 50 % for the imaginary part and 35 % for the volume size distributions (Dubovik et al., 2000).

Table 1. Sun photometer instruments deployed at the CIMH and Ragged Point sites during SALTRACE. The instrument type, location, spectral range, observation period, owner and sampling interval of different measurement types are indicated. The abbreviations of the owners of these instruments refer to the University of Valladolid (UVa), the Leibniz Institute for Tropospheric Research (TROPOS), LudwigMaximilians-Universität München (LMU) and the University of Miami (U. Miami).

Instrument	Location	Observation period	Spectral range	Direct sun (AOD)	Sky radiance	Polarization	Owner
Cimel #789	CIMH	7 June–11 July 2013	340–1640 nm	3 min	1 h	–	UVa
Cimel #440	CIMH	12 June 2013, 14 July 2014	340–1640 nm	15 min	1 h	1 h	TROPOS
SSARA-P	CIMH	10 June–11 July 2013	340–1550 nm	2 s	30 min	30 min	LMU
Microtops	CIMH	7 June–14 July 2013	305–1020 nm	manual (daily)	–	–	LMU
Cimel #305	Ragged Point	Continuous	340–1020 nm	3 min	1 h	–	U. Miami

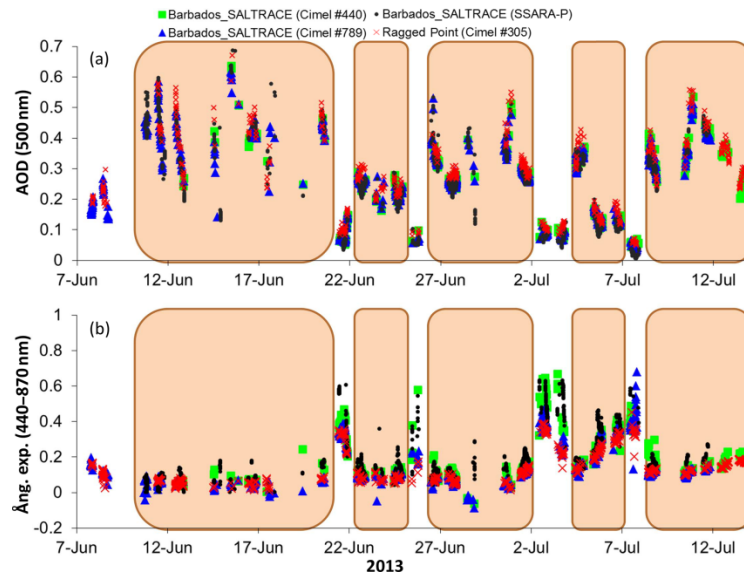


Figure 1. Aerosol optical depth **(a)** and Ångström exponent **(b)** observations during the SALTRACE campaign with all available sun photometers: Cimel #789, Cimel #440 and SSARA-P at the CIMH site and Cimel #389 at the Ragged Point site. See the text and Table 1 for details.

Due to the frequent presence of cumulus clouds in this area, the cloud screening procedure and the inversion of sky radiances have been carefully checked. Besides the AERONET cloud screening (Smirnov et al., 2000a; Giles et al., 2019), we added manual inspection to the dataset to avoid any cloud contamination. The principal plane radiances cannot be easily screened out for clouds due to the lack of symmetry between branches (as is the case for the almucantar). Therefore they were manually inspected after a selection of cases in which both the nearby AOD and almucantar observations were cloud free.

4 Results

4.1 Aerosol optical depth

The aerosol optical depth during the campaign period is shown in Fig. 1a. The number of measurement days was 30, with a total number of 940 cloud-free direct sun observations. The AOD measurements monitor the aerosol content in the atmospheric column. The shaded areas in the figure indicate the five successive dust events that were detected during the SALTRACE experiment in Barbados, with a moderate AOD (500 nm) up to 0.6. The mean AOD values for the events ranged between 0.22 and 0.42. Dramatic changes can be observed depending on the dust advection (e.g., 12 June). There were also short interruptions in which the marine background aerosol was measured. This general sequence of aerosol events was also identified with atmospheric profiling techniques (Groß et al., 2015; Haarig et al., 2017) as well as the in situ dust concentration at the ground (Weinzierl et al., 2017; Kandler et al., 2018). No significant differences are found between the “Barbados_Saltrace” and “Ragged_Point” sites, which is an

important result for all comparisons that can be made among in situ and remotesensing instruments located in these two sites. Moreover, all instruments co-located at CIMH agree within the nominal AOD uncertainty level (0.02) for simultaneous measurements. Some minor differences between SSARA and the AERONET Cimel instruments are to be expected on cloudy days (e.g., 17 and 28 June). This is due to the different data sampling of the instruments (“triplets” or three measurements within 1 min for the Cimel instruments; 2 s sampling for the SSARA) that may produce non-simultaneous data as well as different results in the cloud-screening process.

The Ångström exponent (AE) depicted in Fig. 1b shows low values during the dust-dominated days in the range 0– 0.2, as can be expected for the coarse-dominated mineral aerosol. Even slightly negative AE is observed in some cases. Somewhat higher AE values are observed during the clean (marine-dominated) days. It is also clear from the plot that the agreement among instruments is worse in these pristine days, but this result is to be expected because the uncertainty in AE dramatically increases when the AOD is low (Cachorro et al., 2008).

Table 2. Statistics of sun photometer observations during the SALTRACE campaign during the dust episodes: aerosol optical depth (AOD), the Ångström exponent (AE), precipitable water, single-scattering albedo (SSA), the real and imaginary parts of the refractive index, volume concentrations (VolCon) of the total size distribution (T) and the coarse mode (C), fine-mode fraction (FMF) of the size distribution, the effective radius (EffR) of the total size distribution and the coarse mode, the fraction of spherical particles, the lidar ratio, and the particle linear depolarization ratio (PLDR).

	Mean \pm SD	Median	5th percentile	95th percentile
AOD (340 nm)	0.284 \pm 0.123	0.287	0.088	0.483
AOD (500 nm)	0.262 \pm 0.125	0.266	0.066	0.464
AOD (1640 nm)	0.200 \pm 0.104	0.203	0.043	0.367
Ångström exponent	0.15 \pm 0.12	0.11	0.04	0.39
Water (cm)	3.53 \pm 0.69	3.53	2.44	4.73
SSA (440 nm)	0.942 \pm 0.035	0.937	0.900	0.986
SSA (1020 nm)	0.979 \pm 0.017	0.984	0.944	0.993
Refractive index (real) (440 nm)	1.474 \pm 0.044	1.475	1.415	1.544
Refractive index (imaginary) (440 nm)	0.003 \pm 0.002	0.003	0.001	0.005
VolCon (T) ($\mu\text{m}^3 \mu\text{m}^{-2}$)	0.199 \pm 0.067	0.180	0.132	0.300
VolCon (C) ($\mu\text{m}^3 \mu\text{m}^{-2}$)	0.184 \pm 0.064	0.166	0.123	0.286
FMF	0.088 \pm 0.028	0.081	0.051	0.138
EffR-T (μm)	0.912 \pm 0.180	0.942	0.575	1.169
EffR-C (μm)	1.615 \pm 0.121	1.586	1.495	1.838
Sphericity (%)	23 \pm 28	12	0.1	82
Lidar ratio (440 nm) (sr)	50 \pm 7	49	39	61
Lidar ratio (1020 nm) (sr)	53 \pm 9	54	39	68
PLDR (440 nm)	0.25 \pm 0.06	0.28	0.13	0.31
PLDR (1020 nm)	0.27 \pm 0.05	0.29	0.16	0.32

In order to provide the properties of Saharan dust after the transit over the Atlantic, we need to identify the dust-dominated days from the observation period. Given that the Ångström exponent remains low, we simply selected AOD (500 nm) of > 0.15 to separate dust and marine aerosol observations, following the criterion provided by Smirnov et al. (2002) to identify pure marine aerosol. The uppermost rows of Table 2 show the statistics for the AOD and AE during the dust-dominated days of the campaign.

The long deployment of Cimel #440 for more than 1 year at CIMH (Barbados_Saltrance) allows for the establishing of marine aerosol background for each month. For its determination, we used the 1st percentile of the AOD within each month (instead of the minimum value). For June and July this is 0.04 for the AOD (500 nm). Outside these months, the background was even lower, about 0.02–0.03 for AOD (500 nm). This is the kind of atmospheric situation that we observed for very short periods during SALTRACE, as shown in Fig. 1a. This background marine aerosol always contributes to the aerosol optical depth observed in the atmospheric column.

In previous works it was shown that the wavelength dependence of the aerosol optical depth does not follow the Ångström power law, especially in the shortwave infrared for mineral dust aerosol (Toledano et al., 2011). An example of this feature for SALTRACE data is provided in Fig. 2. As can be seen in the plot, the classical fit of spectral AOD to the Ångström formula (Ångström, 1961) over the visible range (440–870 nm) would largely overestimate the observed AOD at the 1640 nm wavelength. A 2nd-order fit in logarithmic space is needed to properly capture the spectral variation of AOD in the shortwave infrared. This approach has been applied to the AOD data in order to provide the AOD at the 2 μm wavelength. This extrapolated AOD (2.022 μm) was needed for the calibration of the wind lidar operated during SALTRACE on board the Falcon research aircraft. Thanks to this correction and the co-located POLIS, it was possible to provide aerosol backscatter profiles from the wind lidar (Chouza et al., 2015). Moreover, the consistency between the AOD from the sun photometer and the POLIS extinction profiles was demonstrated by Groß et al. (2015).

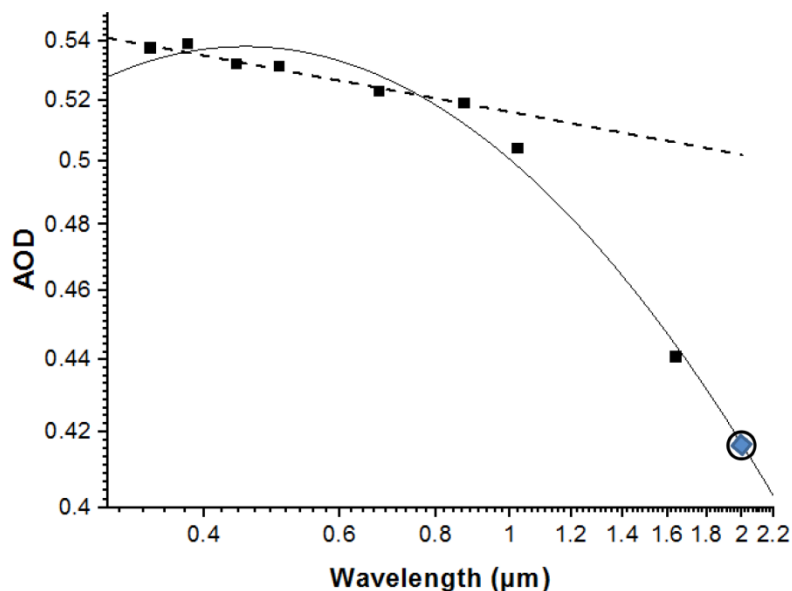


Figure 2. Aerosol optical depth as a function of wavelength in a log–log scale for 11 June 2013 at 11:12 UTC. Solid line indicates the 2nd-order fit over the range 340–1640 nm, whereas the dashed line indicates the 1st-order fit over the range 440–870 nm, corresponding to the Ångström formula (Ångström, 1961). The extrapolated value of AOD at the 2 μm wavelength using the 2nd-order fit is indicated with a circle.

For the aerosol type identification, we have used the scatter plot of the Ångström exponent vs. aerosol optical depth (500 nm), shown in Fig. 3. The increasing AOD and decreasing AE pattern for mineral dust is confirmed by SALTRACE data, in a similar way to the SAMUM campaigns also shown in the plot. We also indicate the threshold (AOD = 0.15) for separation between marine and dust aerosol predominance for SALTRACE data. The plot indicates that only marine and dust aerosols were present during SALTRACE, with no significant contribution of fine particles, as it was the case during SAMUM-2 in the winter season, resulting in a larger AE for fine and coarse-particle mixtures. The AE of dust seems to be lower in SAMUM-2 (Cabo Verde) and SALTRACE (Barbados) than it was very near the sources in SAMUM-1 (Morocco), which is an unexpected result. The reason could be the different background aerosol. High AE values above 1.0 for a low AOD during SAMUM-1 could indicate the presence of fine particles (continental background or anthropogenic pollution) that would result in a higher AE than expected for pure dust. Conversely the background aerosol in the island sites is mainly composed of coarse marine particles with an associated low AE.

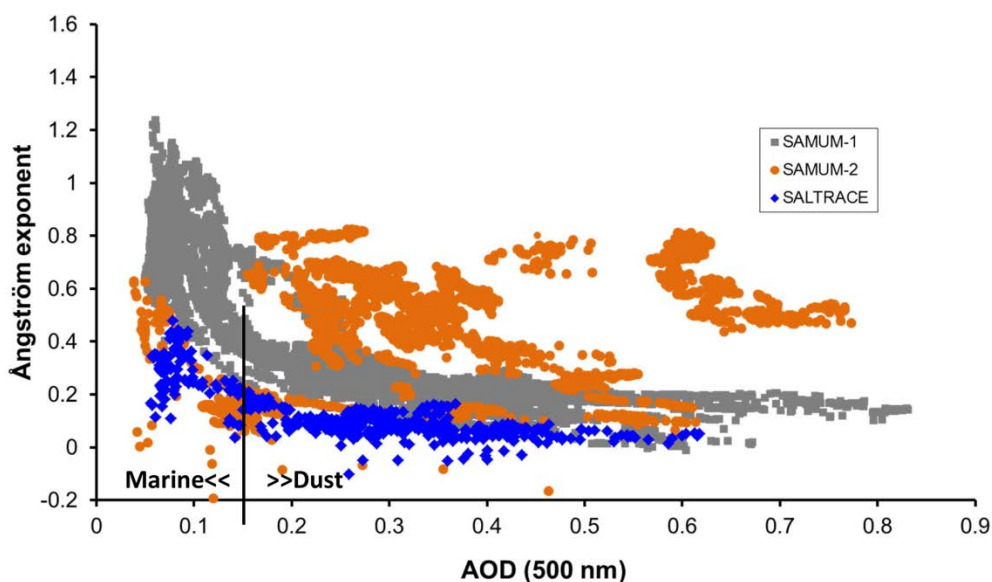


Figure 3. Scatter plot of the Ångström exponent vs. aerosol optical depth (500 nm) for SALTRACE as well as the SAMUM-1 and SAMUM-2 campaigns.

4.2 Inversion of sky radiances

The inversion of multi-angle and multi-wavelength diffuse sky radiances, together with spectral AOD, provides the volume particle size distribution, complex refractive index (spectral) and fraction of spherical particles (Dubovik and King, 2000; Dubovik et al., 2006). From these basic properties, a set of optical and micro-physical properties of the aerosol particles are obtained: the fine-mode fraction, effective radius, single-scattering albedo, absorption AOD, phase function and asymmetry parameter. In fact, the inversion code can provide column-integrated values for other interesting

properties, like the lidar ratio, particle linear depolarization ratio, radiation fluxes or radiative forcing. During the SALTRACE observation period (30 d) a total number of 54 successful inversions were obtained. The number of data is low compared to the amount of AOD data both because of the lower measurement frequency and the difficulty in meeting the required number of cloud-free observation angles between the frequent cumulus clouds. Therefore the inversion data are extremely valuable pieces of data that provide advanced information about aerosol properties that are key for the evaluation of the aerosol radiative effect. The statistics for some of these parameters are presented in Table 2. It must be noted, however, that a certain contribution of the marine aerosol to the column aerosol properties is always present; therefore values in Table 2 correspond to a mixture of dust (pre-dominant) with some marine aerosol.

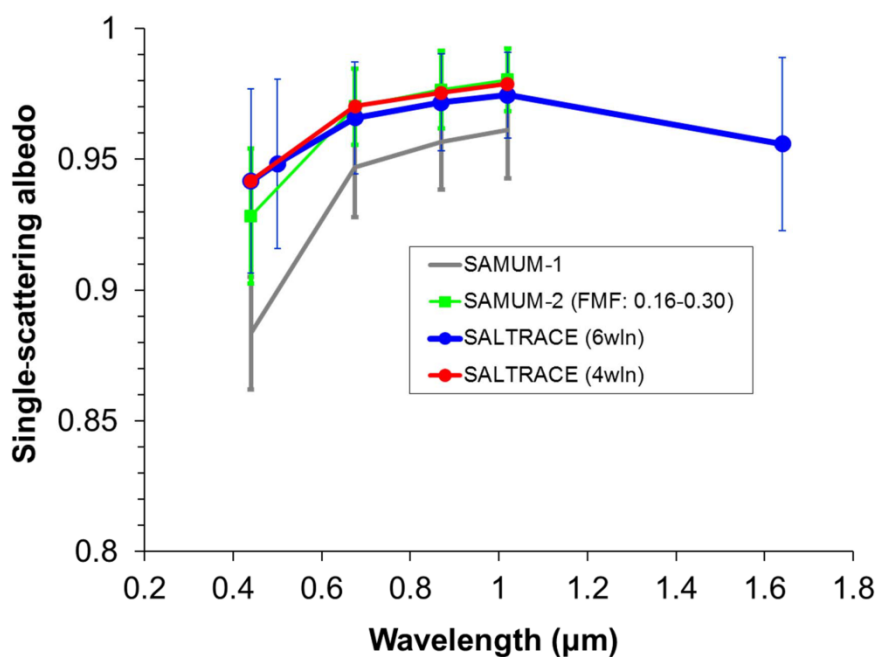


Figure 4. Single-scattering albedo as a function of wavelength for SALTRACE as well as the SAMUM campaigns. Average values for dust cases in each campaign are provided. Bars indicate ± 1 standard deviation. For SAMUM-2, only cases with low fine-mode fractions (FMF) between 0.16 and 0.30 are considered. For SALTRACE data, retrievals using six wavelength (6wln) and four wavelength (4wln) channels are shown.

One of the above-mentioned key properties is the singlescattering albedo (SSA) and its spectral dependence. The increase of the single-scattering albedo with wavelength is a clear signature for dust (Dubovik et al., 2002). The volume particle size distributions ($dV/d\ln R$) depicted in Fig. 5 provide the comparison between the SALTRACE and SAMUM campaigns for data with dust predominance. The mean size distribution for SALTRACE (dust cases) has a volume concentration of $0.2 \mu\text{m}^3 \mu\text{m}^{-2}$ and a clear coarse mode predominance: the fine-mode fraction of the volume concentrations is 0.09. The effective radii of the fine and coarse mode are 0.15 and $1.62 \mu\text{m}$ respectively. For

comparison, the pure dust cases in SAMUM-2 presented the effective radii of 0.17 and 1.73 μm in the fine and coarse modes, with even more pronounced coarse-mode predominance indicated by the lower fine-mode fraction (0.06). Similarly as described by Velasco-Merino et al. (2018), the long-range transport over the Atlantic produces a decrease in volume concentrations (and AOD), but the change in the effective radii of the fine and coarse mode is within uncertainties and therefore not significant. This is in agreement with results by Gasteiger et al. (2017), who showed that the fraction of large dust particles does not change much during trans-Atlantic Transport. The fraction of spherical particles was 0.11 in dust cases of SAMUM-2 and 0.12 for SALTRACE (median values). In the short periods of the marine background the size distributions of the marine aerosol were retrieved. The average value is given in Fig. 5 (dashed line). The volume concentration is clearly lower than for the dust cases. However the coarse-mode effective radius is larger for the marine particles (1.87 μm) than it is for dust. This result was also found in other coastal regions (Prats et al., 2011). In the marine cases, the total volume concentration is 0.05 $\mu\text{m}^3 \mu\text{m}^{-2}$, and the fraction of spherical particles is 0.90.

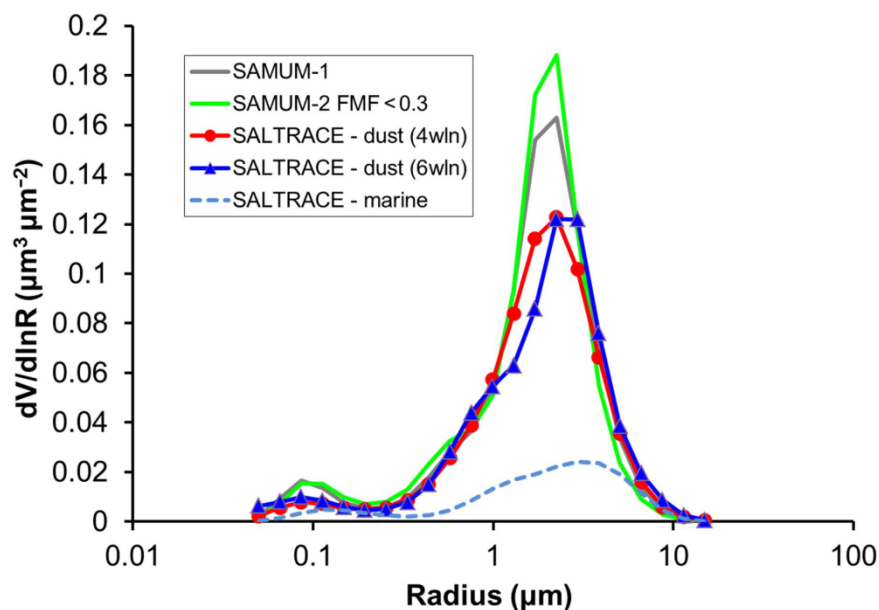


Figure 5. Volume particle size distributions ($dV/d\ln R$) for SALTRACE as well as the SAMUM campaigns. Average values for dust cases in each campaign are provided, based on the inversion of Cimel sun photometer data. For SAMUM-2, only cases with low fine-mode fractions (FMF) between 0.16 and 0.30 are considered.

As shown in previous figures, we have also compared the inversion products using different wavelength ranges. The four-wavelength cases include 440, 675, 870 and 1020 nm wavelength measurements of the AOD and sky radiances. The six-wavelength cases include the previous four channels plus 500 and 1640 nm, therefore extending the spectral range considerably¹. The single-scattering albedo (Fig. 6a), the real part of the refractive index (Fig. 6b) and the fine-mode effective radius (Fig. 6c) experience limited

change if the long wavelength is added. However the coarse-mode effective radius (Fig. 6d) increases considerably if the 1640 nm is used in the inversion. This suggests larger sensitivity to coarse particles that are otherwise not considered by the inversion code. This fact is also noticeable in Fig. 5, in which the coarse mode of the six-wavelength retrieval is shifted to larger radii as compared to the four-wavelength retrieval. This is not the case for the fine mode.

Finally we have analyzed two key lidar properties: the lidar (extinction-to-backscatter) ratio and the particle linear depolarization ratio. As mentioned above, the inversion of sun photometer data can provide column-integrated values for these properties, given that the inversion code computes the full scattering matrix. Therefore the aerosol spheroid model can be used to model lidar observations that are known to be sensitive to the non-sphericity of desert dust particles. Figure 7 summarizes the results. For the sun photometer we used the two retrievals (four and six spectral channels), based on inversions of Cimel #789 measurements. The lidar data were obtained with POLIS at 355 and 532 nm (Groß et al., 2015) as well as BERTHA at 355, 532 and 1064 nm (Haarig et al., 2017) and correspond to dust layers.

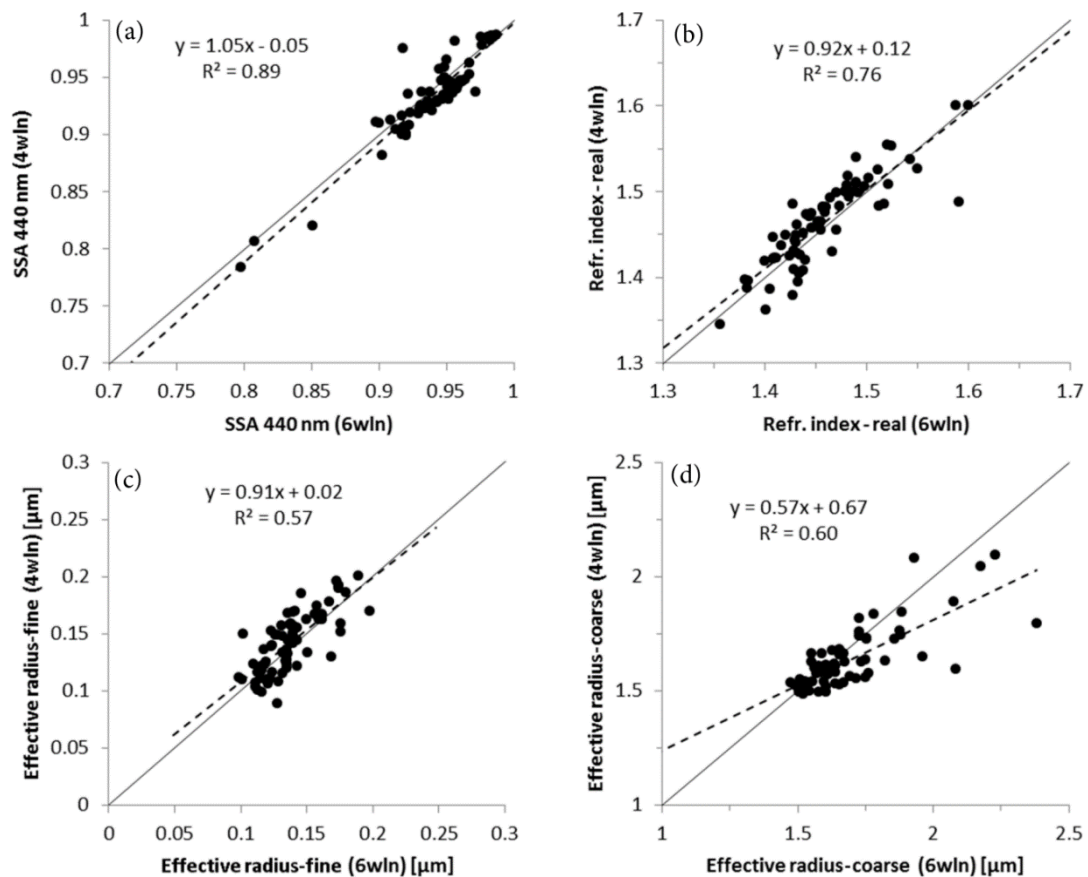


Figure 6. Comparison of inversion retrievals using four spectral channels (440, 675, 870 and 1020 nm) or six channels (440, 500, 675, 870, 1020 and 1640 nm) in the diffuse sky radiance: **(a)** single-scattering albedo (440 nm); **(b)** the real part of the refractive index, **(c)** the effective radius of the fine mode, and **(d)**

the effective radius of the coarse mode. Data from Cimel #789 at Barbados_Saltrace using almucantar and principal plane observations. Solid lines indicate the 1 : 1 line. Dashed lines indicate the linear fit to the displayed data, for which the line equation and correlation coefficient are also provided.

Figure 7a shows the lidar ratios (LR), which were about 55 sr in POLIS (similar for BERTHA, not shown). Lidar ratios derived from sun photometer are lower, about 50 sr. This behavior is opposite to what was found in previous comparisons using SAMUM data (Müller et al., 2010a, 2012), in which the LR values derived from sun photometer inversion were higher than the values provided by the lidars, especially in the shorter wavelengths. The analysis also shows a large increase for LR at 1640 nm observed during SALTRACE; unfortunately lidar data do not provide information that would help to verify the sun photometer retrieval in that spectral region.

Concerning the particle linear depolarization ratio (PLDR), the results are depicted in Fig. 7b. This parameter is sensitive to the particle shape, therefore strongly dependent on the spheroid model used for the inversion of sun photometer data. The average values retrieved from the sun photometer are 0.25 to 0.27 (440 to 1020 nm) with the fourwavelength retrieval. The six-wavelength retrieval provides values which are a bit higher in the shorter wavelengths (0.28 at 440 nm) and very similar at 1020 nm. More importantly, the wavelength dependence of the PLDR shown by BERTHA is captured by the AERONET six-wavelength retrieval, and not the four-wavelength one, even though the PLDR at 1020–1064 nm derived from the sun photometer is in any case higher than indicated by the lidar uncertainty estimates. The excellent agreement (well within the uncertainty estimates) of POLIS, BERTHA and the sun photometer depolarization ratios in the 500–532 nm wavelength range is also remarkable, in particular as this was not the case for the SAMUM data reported by Müller et al. (2010a). Overall, the spheroid model and the Dubovik inversion seems to provide better results (closer to the lidar measurements) for SALTRACE than was reported for the SAMUM campaigns.

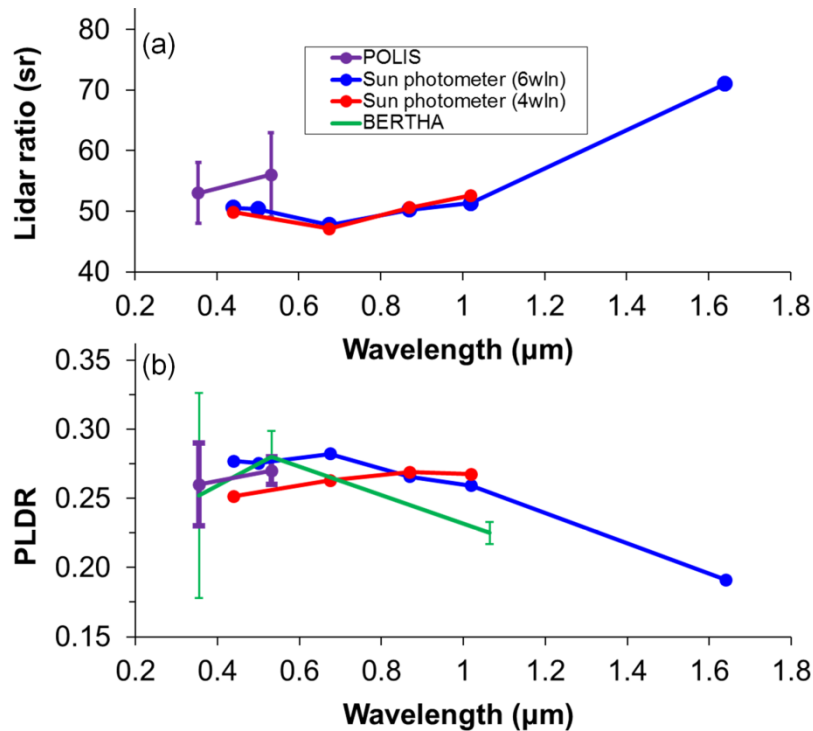


Figure 7. Wavelength dependence of the (a) lidar ratio (LR) and (b) particle linear depolarization ratio (PLDR), for dust cases during SALTRACE. Data from POLIS (Groß et al., 2015) and BERTHA (Haarig et al., 2017) are compared to the four-wavelength and sixwavelength sun photometer retrievals. Vertical bars in the lidar data indicate uncertainty due to systematic errors.

4.3 Comparison with in situ observations at Ragged Point

The comparison between remote-sensing and in situ aerosol measurements is a difficult task due to multiple factors. The atmospheric volume that is observed is normally different: it is at ground level for routine ground-based monitoring with in situ instrumentation; a profile for lidar typically starts some hundreds of meters above the ground due to overlap issues; or the entire atmospheric column for sun photometer retrievals is measured. Only in very well-mixed atmospheres with a single predominant aerosol type is it possible to tackle this kind of comparison. Another possibility is to compare lofted layers observed with lidar and aircraft in situ observations. Other obvious limitations are the presence of inlets, drying elements, etc. needed to introduce the sampled air into the in situ instruments, as compared to the ambient aerosol measured with remote-sensing techniques. Changes in pressure are to be considered in aircraft measurements too. On the other hand, remote-sensing data need to be introduced in inversion algorithms that impose mathematical and physical constraints. Overall, both intensive and extensive aerosol properties need to be compared with extreme caution, and it is still an open question as to what extent a closure approach is feasible and in situ and remote-sensing observations can be reconciled. Several works

already showed these difficulties and reported contradictory results in some cases (Reid et al., 2003; Ryder et al., 2015, and references therein).

Valuable efforts have also been attempted in the context of the SAMUM campaigns (Müller et al., 2010a, b, 2012), in which very special atmospheric conditions were measured with multiple state-of-the-art instruments. The agreements and discrepancies found in those works still remain for much of the SALTRACE data. For instance, the mean real part of the refractive index (440 nm) during SALTRACE retrieved with sun photometer data is 1.47 for mineral dust (Table 2), which is much lower than the value reported from in situ observations, about 1.55–1.61 (Kandler et al., 2011). The problems encountered to retrieve the correct dust refractive index using a spheroid model were also highlighted by Kemppinen et al. (2015). Conversely, the single-scattering albedo and its spectral dependence (Table 2) are very similar for dust using sun photometer and in situ optical instruments.

The difficulties to compare in situ and column (sun photometer) size distributions (e.g., Toledano et al., 2011; Ryder et al., 2015) are still present in SALTRACE data. As an example, we have plotted in Fig. 8 the volume size distributions derived from in situ and sun photometer data for a dust and a no-dust case. We have converted the column size distribution from the sun photometer (originally in $\mu\text{m}^3 \mu\text{m}^{-2}$) to concentrations in $\mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3}$ assuming that the dust layer is distributed evenly in a layer and using a layer height of 4 km for the dust case and 1.5 km for the marine case (data from the co-located POLIS lidar; Groß et al., 2015, Fig. 1). About the shape of the size distributions, the coarse-mode discrepancy is strongly produced by the inlet efficiency in the in situ data (PM10 inlet). However even the fine mode does not present a similar shape, in this case likely produced by the difficulties of the sun photometer inversion to correctly reproduce the fine mode in the presence of a strongly predominant coarse mode (Torres et al., 2017). In the marine (no-dust) case, the fine mode has a similar shape and effective radius, although a strong shift is found in the coarse mode. For the dust case, the effective radius is a factor of 1.8 larger for the sun photometer size distribution.

Nevertheless, some in situ and column parameters show better correlation, as is the case for the ground-based dust concentration and the aerosol optical depth. This was already highlighted for SALTRACE (Weinzierl et al., 2017, see Fig. 4) as well as for long-term monthly means at the site in Barbados (Smirnov et al., 2000b). The good correlation and absence of time lag between in situ and column data indicates that dust transported in lofted layers is, at the same time, mixed down into the boundary layer over Barbados.

5 Conclusions

The analysis of the aerosol optical depth revealed a continuous succession of dust events during SALTRACE, only interrupted during short periods in which the marine aerosol background was observed. This is as low as 0.04 for AOD (500 nm) during the summer months. In contrast, dust layers resulted in a mean AOD (500 nm) of 0.26. The aerosol classification analysis indicates that marine and dust were the only aerosol types observed during the experiment. The wavelength dependence of the aerosol optical depth was investigated in order to provide an estimated value at the 2 μm wavelength, needed for the wind lidar data analysis (Chouza et al., 2015). A 2nd-order fit was needed to capture the appropriate spectral variation in the shortwave infrared.

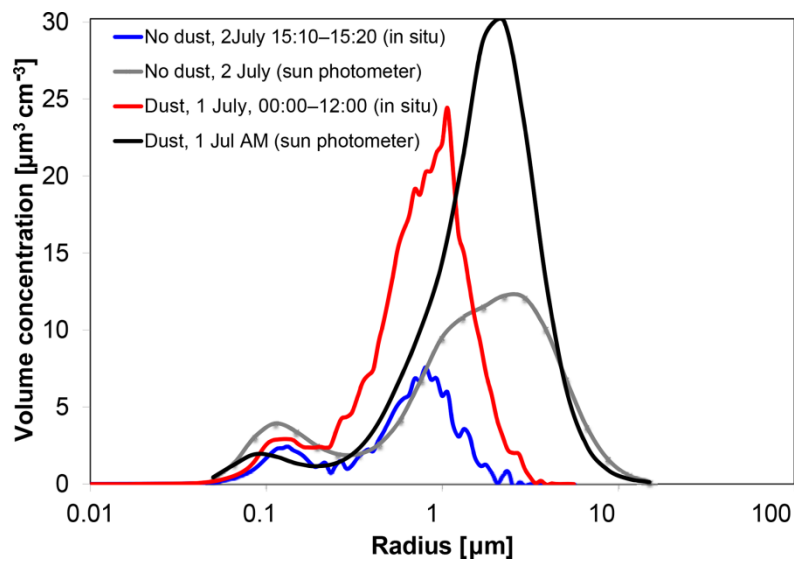


Figure 8. Volume particle size distributions for 1 July 2013 (dust case) and 2 July 2013 (no-dust case) measured in situ and by the inversion of the sun photometer data. The latter have been converted to the concentration using a layer height derived from the co-located lidar observations (see details in the text).

The sky radiance data were inverted using the Dubovik code for both almucantar and principal plane observation geometries, as well as using two different spectral ranges (440–1020 and 440–1640 nm). Only the coarse-mode retrieval (size distribution and corresponding effective radius) changes significantly by enhancing the spectral range, showing a shift toward larger radii. As compared to the retrieved size distributions during SAMUM, the change in the effective radii of the fine and coarse modes is within the uncertainties and therefore not significant. The fine-mode fraction of the size distribution is on average 0.09, thus indicating a clear coarse-mode predominance. During marine (no-dust) cases, the coarse-mode effective radius is larger than it is for dust.

Column-integrated values were also investigated for two lidar-relevant properties: the lidar ratio and particle linear depolarization ratio. The sun photometer inversion

retrieval of these parameters seems to improve with respect to previous comparisons carried out with SAMUM data. However, robust uncertainty estimates for the sun photometer inversion products are needed to corroborate this agreement.

The comparison of sun photometer retrievals with in situ aerosol properties is still a subject of investigation. Even if a very good correlation was found between the dust concentration at ground level and aerosol optical depth, the comparison of other variables like the particle size distributions requires considerable experimental efforts (e.g., additional aircraft measurements) and is thus still challenging. The analysis of SALTRACE data will continue to aim at a closure approach, i.e., the characterization of the same aerosol parameters with various independent methods.

Data availability. AERONET aerosol data are available at <https://aeronet.gsfc.nasa.gov> (NASA Goddard Space Flight Center, 2019, Barbados_SALTRACE and Ragged_Point sites). SSARA minute-based AODs are available upon request.

Author contributions. CT and CV led the analysis and the writing of the paper. BT performed the sun photometer inversions using Dubovik code. TM provided data and the analysis of in situ measurements. AA, MH and SG contributed with lidar data and their interpretation. All authors contributed to the scientific analysis and the preparation and revision of the paper.

Competing interests. The authors declare that they have no conflict of interest.

Special issue statement. This article is part of the special issue “The Saharan Aerosol Long-range Transport and Aerosol-Cloud-interaction Experiment (SALTRACE) (ACP/AMT inter-journal SI)”. It is not associated with a conference.

Acknowledgements. The authors gratefully acknowledge the effort of AERONET and the University of Miami to maintain the Ragged Point site. We thank Volker Freudenthaler and Meinhard Seefeldner from LMU for all their work in relation to SALTRACE, especially the contribution to the development of the SSARA-P photometer.

Financial support. This research has received funding from the European Union’s Framework Programme for Research and Innovation, Horizon 2020 (grant agreement no. 654109; ACTRIS- 2). Bernadett Weinzierl and Josef Gasteiger have received funding from the European Research Council (ERC) under the European Union’s Framework Programme for Research and Innovation, Horizon 2020 (grant agreement no. 640458; A-LIFE) and from the Helmholtz Association (grant no. VH-NG-606; Helmholtz-Hochschul-Nachwuchsforschergruppe AerCARE). The funding by MINECO (grant no. RTI2018-097864-B-I00) and Junta de Castilla y León (grant no. VA100P17) is also acknowledged.

Review statement. This paper was edited by Claire Ryder and re- viewed by two anonymous referees.

References

See references section of the PhD Thesis

Capítulo 6. Impact of long-range transport over the Atlantic Ocean on Saharan dust optical and microphysical properties

Resumen

Hasta la realización de este trabajo, no había una climatología de aerosoles mediante medidas de fotómetros en la zona del Caribe. Aunque hay desde hace varias décadas numerosos estudios sobre la llegada de aerosol sahariano al Caribe (Carlson & Prospero, 1972; Prospero et al., 2014), se necesitan todavía estudios en profundidad que utilicen grandes series temporales de datos para investigar la conexión de la cuenca del Caribe con el continente africano. Este estudio de transporte del aerosol de origen desértico es muy relevante tanto a nivel climático como por otros aspectos biológicos, ya que trata de cuantificar el cambio en las propiedades del aerosol Sahariano debido al transporte de más de 7000km sobre el Atlántico.

A lo largo este capítulo se abordará por tanto el cambio en las propiedades en columna de los aerosoles, poniendo el foco en el polvo mineral de origen desértico, en la cuenca del Caribe después de su transporte desde el continente africano (Desierto del Sahara) a lo largo del Océano Atlántico. Para ello se han utilizado datos tomados con el fotómetro CIMEL de la red AERONET (ver Sección 3.1) en cinco estaciones del Caribe repartidas a lo largo de todo el caribe oriental, y dos de África Occidental (Dakar y Cabo Verde) durante el periodo 1996-2014. Los datos recogidos se han utilizado para realizar un estudio minucioso los cambios en las propiedades de los aerosoles: espesor óptico del aerosol, distribución de tamaños, albedo de dispersión simple, e índices de refracción real e imaginario.

Previo a la comparación de las propiedades a ambos lados del Atlántico se ha realizado una climatología local de aerosoles para ambas áreas por separado, con la finalidad de obtener una primera visión de las épocas de más actividad en cuanto a presencia de episodios de polvo mineral por meses. Una vez realizadas dichas climatologías, se han investigado las conexiones de masa de aire que unen la zona de África occidental con la cuenca del Caribe por medio de retro-trayectorias de masa de aire calculadas con el modelo HYSPLIT (ver Sección 3.2.3), para poder crear un primer “listado” de días en los que una misma masa de aire atraviesa las estaciones de estudio a ambos lados del Atlántico. Durante el período investigado, se han identificado 3174 días conectados entre ambos lados del Atlántico, en promedio, 167 días de conexión por año. Entre estas conexiones, 1162 presentan datos de aerosoles en las estaciones del Caribe y, días antes (entre 5 y 7 días) en las estaciones del oeste de África. De estos 1162 días, 484 cumplen con los criterios para caracterizarse como eventos de aerosol de polvo mineral.

Centrándonos en esos días en los que podemos asegurar que la misma masa de aire conecta nuestra zona de estudio del lado africano con la cuenca caribeña, se observan los siguientes cambios en las propiedades del aerosol debido a su transporte: el AOD disminuye aproximadamente 0.16 o 30%; la forma de la distribución del tamaños no muestra cambios significativos; el albedo de dispersión simple, los índices de refracción y el factor de asimetría permanecen sin cambios; la diferencia en el radio efectivo en el área de África occidental con respecto a la cuenca del Caribe está entre 0 y +0.3 μm ; y la mitad de los casos analizados presentan predominio de partículas no esféricas en ambas áreas, lo que nos da una cierta evidencia de que el aerosol que estamos midiendo a ambos lados del Océano Atlántico es básicamente el mismo, y que sus propiedades apenas se han modificado durante el transporte, excepto la lógica pérdida de concentración al dispersarse en un área mayor.

Artículo 3. Impact of long-range transport over the Atlantic ocean on Saharan dust optical and microphysical properties

C. Velasco-Merino¹, D. Mateos¹, C. Toledano^{1*}, J. Prospero², J. Molinie³, L. Euphrasie-Clotilde³, R. González¹, V.E. Cachorro¹, A. Calle¹, A. M. de Frutos¹

¹Grupo de Óptica Atmosférica, Dpto. de Física Teórica Atómica y Óptica, Universidad de Valladolid, Spain

²Cooperative Institute for Marine and Atmospheric Studies, Rosentiel School of Marine and Atmospheric Science, University of Miami, Miami, Florida, USA

³Laboratory of Geosciences and Energy, Université des Antilles, Guadeloupe

* Corresponding author: Office B110, Grupo de Óptica Atmosférica, Dpto. de Física Teórica Atómica y Óptica, Fac. Ciencias – UVa, Paseo Belén 7, CP 47011, Valladolid.

Keywords: Saharan mineral dust; long-range transport; aerosol optical and microphysical properties; sun photometry; AERONET; aerosol climatology

Abstract

Mineral dust aerosol can be a major driver of aerosol climatology in regions distant from the sources. This study addresses the change of columnar aerosol properties when mineral dust arrives to the Caribbean Basin after transport from Africa over the Atlantic Ocean. We use data from NASA Aerosol Robotic Network (AERONET) sites in five Caribbean and two West African sites to characterize changes in aerosol properties: aerosol optical depth, size distribution, single scattering albedo, and refractive indexes. After obtaining local aerosol climatology in each area, the air mass connections between West Africa and Caribbean Basin have been investigated by means of air mass back trajectories. Over the period 1996-2014 we identify 3174 connection days, on average, 167 connection days per year. Among these, 1162 pairs of data present aerosol data in Caribbean sites with corresponding aerosol observations in Western Africa sites ~5-7 days before. Of these 1162 days, 484 meet the criteria to be characterized as mineral dust outbreaks. Based on these days we observe the following changes in aerosol-related properties in transiting the Atlantic: AOD decreases about 0.16 or -30%; the volume particle size distribution shape shows no changes; single scattering albedo, refractive indexes, and asymmetry factor remain unchanged; the difference in the effective radius in West African area with respect to Caribbean Basin is between 0 and +0.3 μm ; and half of the analyzed cases present predominance of non-spherical particles in both areas.

1. Introduction

Africa is one of the world's largest dust sources, estimated to produce over half the global total (Huneeus et al., 2011). Much of this dust is transported to the west and deposited over the Atlantic Ocean but much of it carried reaches northern South America (Prospero et al., 2014; Yu et al., 2014, 2015), the Caribbean Sea (Prospero and Lamb, 2003), and southern United States (Bozlaker et al., 2013). Therefore, mineral dust serves as a key player in the planetary system with positive effects as a prolific source of nutrients to oceanic and forest ecosystems and significant planetary cooling, but with negative effects related to human health transporting bacteria, degrading air quality, and affecting climate/meteorological patterns, among others (e.g., Prospero et al., 2005).

The observation of the Africa-Atlantic Ocean-America connection has been addressed since the 1970s using meteorological information linked to in-situ and satellite aerosol data (e.g., Prospero et al. 1981; Jickells et al., 2005; Rodríguez et al., 2015; García et al., 2017). Recently developed techniques such as MACC (Monitoring Atmospheric Composition and Climate; Chouza et al., 2016) or MOCAGE (Modélisation

de la Chimie Atmosphérique Grande Echelle; Martet et al., 2009) models have been also used to monitor dust plumes.

Studies dealing with long-term (e.g., Prospero and Lamb, 2003; Prospero and Mayol-Bracero, 2013) and short-term (e.g., Reid et al., 2003; Colarco et al., 2003; Kaufman et al., 2005; Valle-Díaz et al., 2016) databases show a seasonal dependence in the intensity of the long-range transport, being more intense during boreal summer in the subtropical zone. Within this framework, the SALTRACE program was developed in 2013 (Weinzierl et al., 2016). The core of the SALTRACE program was an atmospheric column closure experiment, held in June/July 2013, involving ground-based and airborne in-situ and remote sensing observations in African and Caribbean sites. Preliminary results have pointed out that mineral dust makes a significant contribution to aerosol load in the Caribbean. During this campaign, the removal rate of large super-micron particles seems to be slower than expected (Weinzierl et al., 2016) as previously reported by Maring et al. (2003).

Within SALTRACE, a unique Lagrangian in-situ study was carried out, wherein a dusty air mass was sampled over the Cape Verde Islands and again five days later over Barbados separated by a distance of more than 4,000 km. Our study is inspired in that experiment, although our approach is to use columnar aerosol data collected from CIMEL sun-photometers of the AERosol RObotic NETwork (AERONET) in the two areas. The amount of AERONET data is as large as 19 years of ground-based measurements in various sites. Therefore, the aim of this work is to investigate the changes in dust optical and microphysical properties due to the long-range transport, by comparing AERONET observations in West Africa and the Caribbean Basin under a climatological perspective (period 1996-2014).

Section 2 presents the database and methodology used to match daily-averaged AERONET data at both sides of the Atlantic Ocean using air mass backwards trajectories. Section 3 describes, separately, the long-term aerosol climatology in West Africa and the Caribbean Basin and the comparison between AOD and Dust concentration in the Caribbean Basin. Section 4 presents the monthly variability of aerosol size parameters. Section 5 presents the air mass Caribbean-African connection climatology, as well as the change in aerosol optical depth, size distribution, and single scattering albedo, among others after the long-range transport. Finally the conclusions are presented in Section 6.

2. Database and Methodology

2.1. AERONET measurements and sites.

The main database for this study includes the daily mean values of columnar aerosol data measured by CIMEL CE-318 Sun photometer in the AERONET framework (Holben et al., 1998). The direct sun algorithm provides a database that contains instantaneous values (every 15 minutes) of spectral AOD at 7 wavelengths in the range 340nm – 1020nm (in some cases also 1640nm) and the associated Ångström Exponent (AE) derived in the range 440-870 nm. We only use AOD and AE quality assured level 2.0 data (version 2) which ensures the reliability of the measurements and includes cloud-free screening. The AOD values presented in this study are only referred to the 440 nm wavelength; hence, from now on AOD indicates the aerosol optical depth at 440nm.

Figure 1 and Table 1 present the five AERONET sites in the Caribbean (CAR) zone and the two sites in the African (AF) zone chosen in this study.

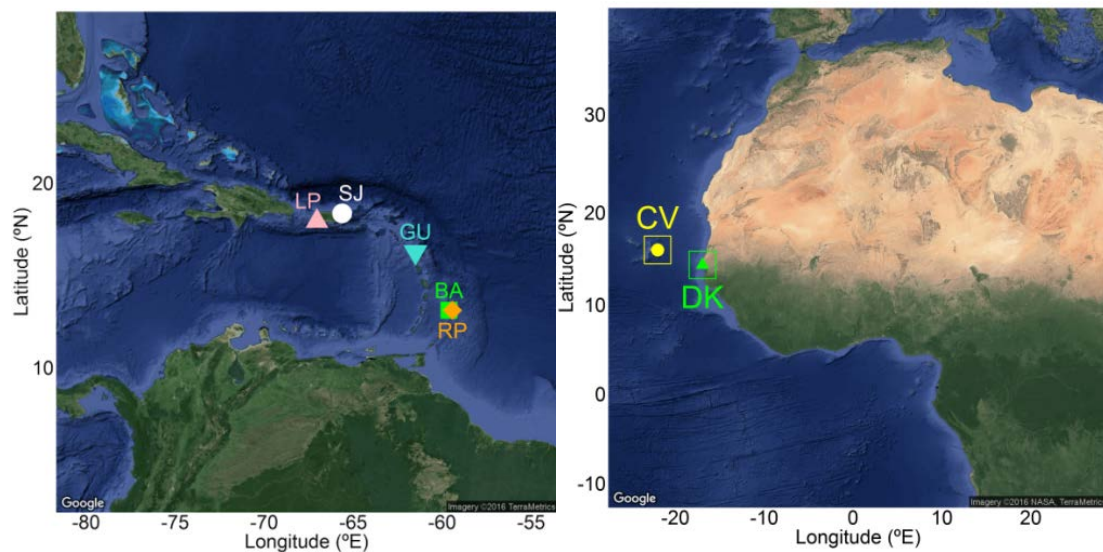


Figure 1. AERONET sites in the Caribbean Zone (left) and African zone (right). For acronyms see Table 1.

Table 1. Geographical coordinates, period of AERONET data and total number of level 2.0 AOD daily data from the different sites used for the global African and Caribbean databases. To highlight the number of available inversion products, the number of daily data of volume particle size distribution (VPSD) is presented.

Area	Site	Coordinates (°N, °E, m a.s.l.)	Time period	Number of AOD / VPSD daily data
AF	Capo_Verde (CV)	(16.71, -22.93, 60)	1993-2014	4635/1910
	Dakar (DK)	(14.38, -16.95, 0)	1996-2014	3593/2466
CAR	Barbados (BA)	(13.15, -59.62, 114)	1996-2000	938/50
	Barbados_SALTRACE (BA)		2013-2014	181/7
	Ragged_Point (RG)	(13.15, -59.42, 40)	2007-2014	1768/415
	Guadeloup (GU)	(16.22, -61.53, 39)	1997-2014	1949/441
	La_Parguera (LP)	(17.97, -67.03, 12)	2000-2014	3303/1467
	Cape_San_Juan (SJ)	(18.38, -65.62, 15)	2004-2014	1901/401

The CIMEL instrument hourly measures sky radiances both in almucantar and principal plane geometries at certain wavelengths in the range 340-1640 nm (number of wavelengths depending on the instrument model). The sky radiances, together with the AOD, are used to derive optical and microphysical properties of the aerosol using inversion procedures (Dubovik et al., 2006). The inversion-derived parameters used in this study are: Volume Particle Size Distribution (VPSD) and the volume concentration for the fine, coarse and total size distribution (VC_F , VC_C , VC_T , respectively), Sphericity fraction (SF), Total Effective Radius (ER_T), Real Refractive Index (REFR), Imaginary Refractive Index (REFI), Single Scattering Albedo (SSA), and Asymmetry Parameter (g).

The Level 2 inversion requirement rejects AOD values less than 0.4 which dramatically reduces the amount of data. In order to increase the number of measurements in the

data set we used level 1.5 inversion products but we applied an extra level of quality control to ensure the reliability of the inversion data:

- VPSD and ER_T : same as AERONET level 2.0 criteria (solar zenith angle $>50^\circ$, number of symmetrical angles, and sky error between 5% and 8% depending on AOD, see http://aeronet.gsfc.nasa.gov/new_web/Documents/AERONETcriteria_final1_excerpt.pdf), but without threshold with respect to AOD.
- SSA, g, REFR, REFI and SF: same as AERONET level 2.0 criteria but with $AOD \geq 0.20$ (see Dubovik et al., 2006; Mallet et al., 2013; Mateos et al., 2014) instead of >0.4 .

The use of level 1.5-filtered data with an extra quality control has been previously used by other authors (e.g., Burgos et al., 2016). All the available inversion products are daily averaged in this study.

Global climatology in West Africa and Caribbean Basin of key aerosol properties are addressed in Section 3. For this global study, all daily available records (see Table 1) in the two West African and five Caribbean sites are averaged in the 1996-2014 period, resulting two databases with 5656 and 5099 days of data, respectively.

2.2. Linkage between Caribbean and West Africa by air mass back-trajectories

All the air mass connections between West Africa and Caribbean Basin are searched. This task requires the separate analysis for each Caribbean site. For instance, the methodology used in this study for Barbados site is the following:

- **Step1:** We calculated three-dimensional 10-day back-trajectories with 1-hour time resolution using the Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory Model (HYSPLIT) version 4.0 (Stein et al., 2015). The geographical coordinates used as the start point are those presented in Table 1. As mineral dust can be transported to altitude levels higher than the boundary layer, most notably in the Saharan Air Layer (Carlson and Prospero, 1972; Yu et al., 2014; Groß et al., 2016), back-trajectories were calculated at 750, 2500 and 4500 m (a.g.l.) using the model vertical velocity in the calculations. The meteorological database used as input for HYSPLIT is the NCAR/NCEP global Reanalysis (Kalnay et al., 1996). The evaluation is performed for each day in the period 1996-2014 at 16:00 UTC (around local noon).
- **Step2:** If any of these passes through a $3^\circ \times 3^\circ$ box centered on the West African sites - we consider that a link has been established between Caribbean and African sites. The transit time is typically about 5 – 7 days. In some cases an air

mass back-trajectory passes through both Capo_Verde and Dakar boxes. In case the mean of the aerosol observations will be used.

- **Step3:** Once the dates in which the air mass is measured in Barbados and in Capo_Verde and/or Dakar sites are established, the associated aerosol data is assessed. In the case of Barbados site, the corresponding daily means of all AERONET products are used. However, the African site analysis requires a special procedure. The visual inspection of many of the cases shows that the aerosol records for the specific date obtained in the trajectory analysis often fell on a day without data (e.g., due to cloudy or rainy conditions) or did not capture the central days of the dust event. To resolve this problem, we introduced a ± 1 day adjustment to the back-trajectory estimated date at Capo_Verde and Dakar. This is in line with previous studies which state that desert dust episodes in West African sites usually last for several days (e.g., Knippertz and Stuut, 2014). For the Barbados-African cases with air masses overflowing only one of the sites, Capo_Verde or Dakar, the corresponding date-adjusted aerosol data are used.

These three steps described are applied to all Caribbean sites. The geographical coordinates used in this procedure are those presented in Table 1. Therefore, the outcomes of this methodology are five databases (one per site) in which each Caribbean site is connected with the African database. For each day between 1996 and 2014 we determine which Caribbean sites present an air mass connection with West African area.

We identify a desert dust event on the basis of the following criteria: $AOD \geq 0.2$ and $AE \leq 0.6$ (e.g., Dubovik et al., 2002; Guirado et al., 2014). In the evaluated global Caribbean-African connected database, the two areas are analyzed separately. Hence, there are two different inventories that contain all days meeting the criteria for mineral dust in the Caribbean Basin and in West Africa. In the global database there are, therefore, three different cases which are extensively analyzed in Section 5:

- a) $D_{AF} + D_{CAR}$: Desert dust conditions occur in both Caribbean and African areas
- b) $D_{AF} + NoD_{CAR}$: Dust condition in West Africa but non-dust condition in the Caribbean
- c) NoD : Non dust conditions

We found a total of 3174 days showing connection between African and Caribbean areas. Just 1162 out of 3174 days present AERONET data (level 2.0) of AOD and AE. Of these 1162 days, 484 meet the criteria to be characterized as mineral dust outbreaks.

For the analysis of microphysical and radiative properties, the number of matching inversion data is however much smaller (just 71 cases). The frequent cloudiness in the Caribbean basin is the main difficulty for the inversion of sky radiances (see Table 1).

3. Seasonal variability of aerosol load at the West African and Caribbean sites

In this section the analysis of the monthly-seasonal cycle of the main aerosol properties in the two areas is presented separately – that is there is no requirement that trajectories connect the African and Caribbean sites. This section summarizes overall multi-year statistics (from 1996 to 2014) of AOD, AE and VPSD quantities.

Figures 2 and 3 present the multiannual AOD and AE monthly averages of 19 years in African and Caribbean regions, respectively. There is a significant difference between the "cold" (October-April) and "warm" (May-September) seasons in both areas. We have held here the usual cold-warm distinction in northern hemisphere areas, but there is not that difference in temperature seasonal cycle.

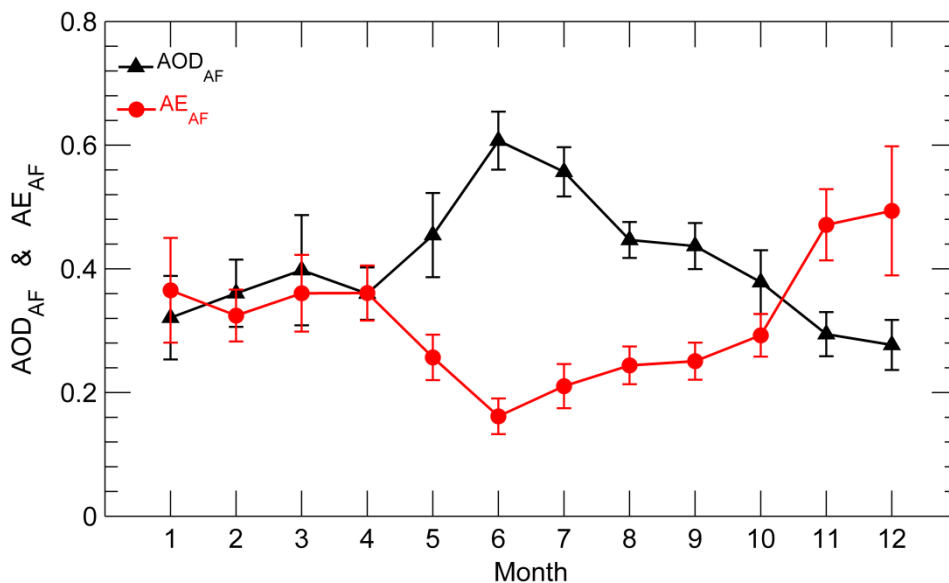


Figure 2. Monthly average of AOD and AE from 1996 to 2014 in the African area. The number of daily means used in the multi-annual averages is 5656.

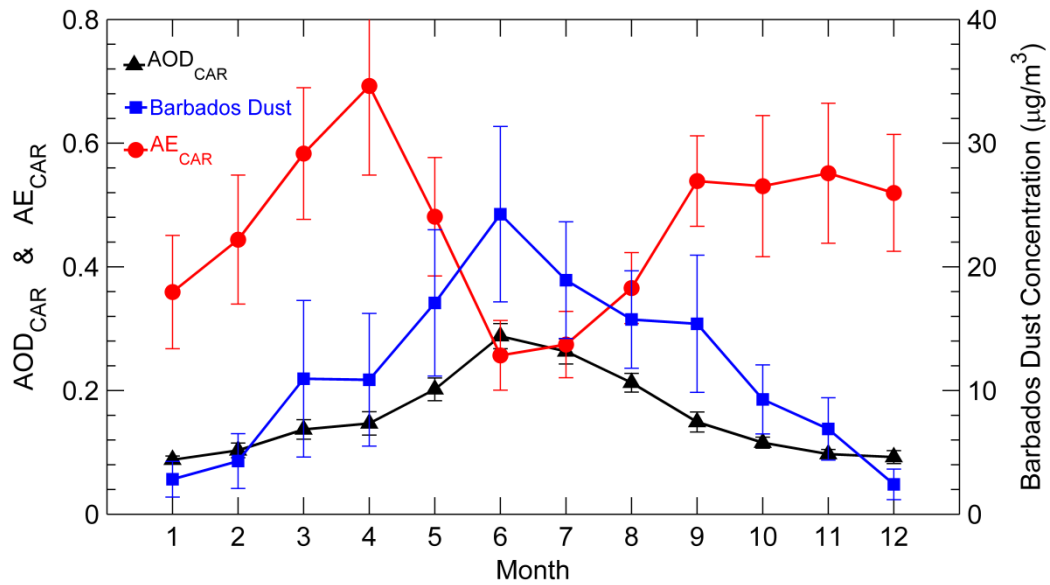


Figure 3. Monthly average of AOD and AE in the Caribbean area from 1996 to 2014 and surface dust concentrations in Barbados in the period 1996-2011. The number of daily means used in the multi-annual averages is 5099 for AOD_{CAR} and AE_{CAR} and 5167 for surface dust concentration in Barbados.

In the West African winter season there is a weak variation of AOD and AE (see Figure 2) with values around 0.3 and 0.3-0.5, respectively. In contrast in the summer season there is an increase of AOD together with a decrease of AE until June when the maximum of AOD 0.6 coincides with a minimum of AE 0.15. This peak was also observed by, e.g., Tegen et al. (2013). After June there is a progressive decrease of AOD values and increase in AE until once again reaching winter levels. Overall, the large AOD and low AE values suggest dominant effect of coarse particles in dust episodes. The ranges of AOD between 0.3 and 0.6 and AE below 0.5 were also obtained by previous studies in West African sites (e.g., Dubovik et al., 2002; Horowitz et al., 2017). Leon et al. (2009) reported that M'Bour site (western Senegal, 70km away from Dakar) is under the major influence of desert dust and tropical biomass burning aerosol emissions throughout the year.

The annual cycle of AOD in the Caribbean (see Figure 3) shows an almost perfect bell shape with the maximum in June (AOD = 0.3) and the smallest values in December-January. In contrast, the AE displays a larger variability along the year: an increase from January to April when AE = 0.7 (the annual maximum), followed by a steady sharp decline until the absolute minimum in June-July with AE= 0.26. Levels remain constant around 0.55 from September to December. This feature can be understood as the fingerprint of the occurrence of mineral dust transport from Africa. The AE variability evidenced by the standard deviations is large driven by the changes in aerosol mixture that occur in this area (e.g., Reid et al., 2003). Clean maritime conditions, associated to background values, have low AOD and low AE (Smirnov et al., 2000), but they can be modified by mineral dust outbreaks from African deserts and biomass burning episodes.

In particular, the large change in AE in the "cold" season is largely due to the advection of pollutant aerosols from higher latitudes (e.g, Savoie et al., 2002; Zamora et al. 2013).

Previous work (e.g., Smirnov et al., 2000) has shown that high concentrations of dust at the surface are correlated with high column optical depths measured by a collocated AERONET instrument. Yu et al. (2014) show that CALIPSO (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations) dust concentrations over Barbados track the surface-based measurements of dust. As a first step we show the relationship between the long-term measurements of dust concentrations at the surface with the columnar aerosol load manifested in AOD. We use the surface dust concentration measured at Ragged Point, Barbados, site (e.g., Prospero and Lamb, 2003; Prospero and Mayol, 2013) between 1996 and 2011. Daily surface dust concentrations are obtained with high volume filter samplers from measured aluminum concentrations assuming an Al content of 8% in soil dust (e.g., Prospero, 1999) or from the weights of filter samples ashed at 500° C after extracting soluble components with water (e.g., Huneus et al., 2011 and references therein).

Surface dust concentration seasonal cycle (Figure 3) presents a significant increase between low values during October-April season up to larger concentrations in May-September season. Overall, the shapes of the annual cycles of AOD and surface dust concentration at Barbados are similar and the same seasonal pattern in both variables is observed.

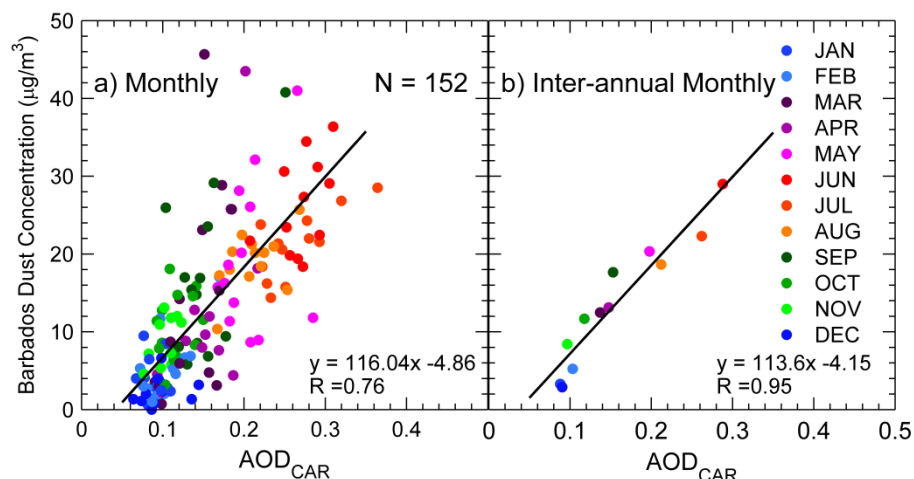


Figure 4. Scatterplot of monthly values of surface dust concentration and AOD in the Caribbean Basin in the period 1996-2011. Solid line highlights the linear fit between both quantities.

Monthly mean AOD is highly correlated with surface dust concentrations as shown in Figure 4 which is based on 3700 pairs of daily data, a total of 192 monthly mean, and 12

inter-annual monthly mean values. The seasonal distribution of the surface-columnar values seems to follow a linear increasing pattern from winter (bluish colors) to summer (reddish colors). The slope of the fit between dust concentration and AOD is about $115 \mu\text{g m}^{-3}$ per unit of AOD for the two cases analyzed here: using 192 monthly means (Figure 4a) and 12 inter-annual monthly means (Figure 4b). The Barbados dust concentration vs AOD shows very good correlation when the same months are averaged along the years. However, the monthly agreement between these two variables displays a certain degree of dispersion with a moderate correlation coefficient. The negative intercepts in the fits are most likely attributable to the effects of sea salt aerosol on AOD.

4. Monthly variability of aerosol size parameters

Figure 5 displays the average monthly cycle of the volume particle size distribution (VPSD) for the African and Caribbean areas, respectively. These figures are based on 3346 and 2165 daily mean values of the AERONET inversion products selected as described above.

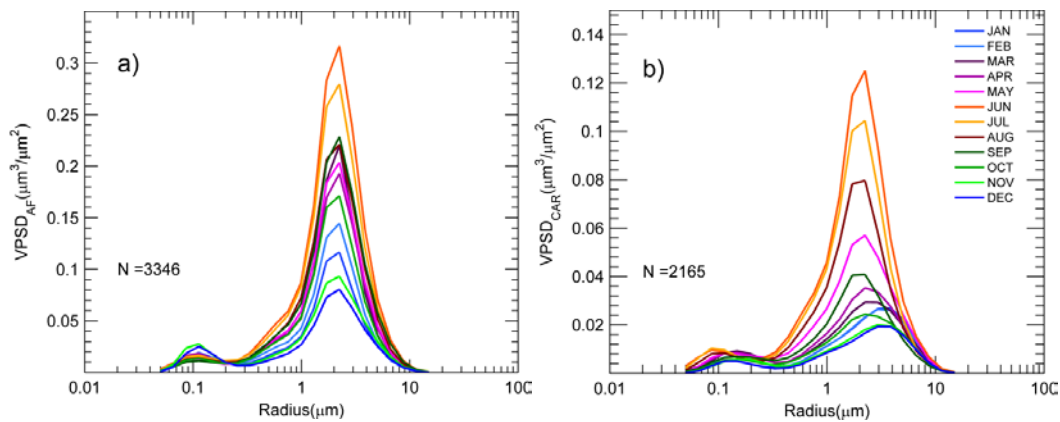


Figure 5. Monthly averages of VPSD from 1996 to 2014 in West African (a) and Caribbean (b) areas.

The coarse mode predominance can be observed throughout the year in both areas. The seasonal cycle shape of VPSD in African area (Figure 5a) does not show any significant change through the year with peak concentration of the coarse mode about $2.24 \mu\text{m}$. The magnitude of VPSD in the coarse mode ranges between maximum values in June with $0.32 \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^2$ and minima in November-December with $0.05 \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^2$. The fine mode plays an almost negligible role throughout the year. This seasonal pattern was already reported by previous studies in the African area (e.g., Dubovik et al., 2002; Eck et al., 2010; Guirado et al., 2014). These studies showed the domination of large

particles (radius beyond $0.6 \mu\text{m}$) with VPSD peaks for coarse mode at $2 \mu\text{m}$, which are independent of the aerosol load.

The conditions observed in the Caribbean area (Figure 5b) show a change in the size of the aerosol particles along the year. With respect to the coarse mode, in the "warm" season (May-Sep) the maximum concentration peaks about $2.24 \mu\text{m}$, linked to mineral dust, and the shape of the size distribution is the same as it is found in the West African sites (Fig. 5a). The concentration values are lower (as it is AOD) but the shape is identical. In the "cold" season (Oct-Apr), however, the coarse mode maximum is achieved at larger radius (about $3.85 \mu\text{m}$) highlighting the predominance of large sea salt particles. This effect has been observed in other coastal locations affected by dust outbreaks (e.g., Prats et al., 2011). In addition, the maximum volume concentration of the coarse mode exhibits maximum values in June with $0.12 \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^2$ and minimum ones in November-December with $0.02 \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^2$. The fine mode also plays an almost negligible role throughout the year in the Caribbean area. The whole curve of VPSD in the "cold" season is in line with previous studies carried out in Oceanic environments (e.g., Dubovik et al., 2002) with low particle volume concentrations peaking at very large radius ($> 3 \mu\text{m}$).

5. Air Mass Connections between African and Caribbean areas

In this section, we select only those days when the back trajectories connect the African area with the Caribbean as explained in Section 2.2. In this way, the changes in the aerosol properties observed in the Caribbean area are established by comparison with those observed some days earlier over the West African sites.

5.1. Air-mass African and Caribbean connections: all data and dusty data

Following the methodology described in the Steps 1 and 2 of Section 2.2, we obtained a list of all days with air mass Caribbean-West Africa connections. Figure 6 shows the seasonal cycle of the total number of days with this connection in the period 1996-2014. Overall, almost half of the days each year (~ 167 days per year) display Caribbean-African connection with a total of 3174 cases in 19 years.

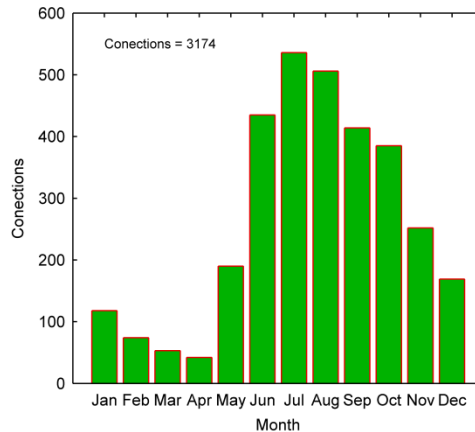


Figure 6. Seasonal cycle of number of Africa-Caribbean Sea air mass connections.

The total number of air mass connections between both areas exhibits small values from January until the absolute minimum in April with only 2 days per year. This minimum of connections could be linked with the local minimum of aerosol load observed in the seasonal cycle in the West African area (see Figure 2).

With the beginning of the "warm" season (May-September) the number of connections shows a notable increase achieving its maximum in July with almost all the days in the Caribbean Basin being connected with West African area. From October to December there is a progressive decline from 20 to 10 connection days per year.

Unfortunately, columnar aerosol data are not available for each one of the 3174 connection days. A total of 1162 out of 3174 days (36% of the total) are present in AERONET data of level 2.0 (see Section 2.2). Furthermore, just 484 cases (15% of the total) meet the dusty criteria in both areas (case 'a') described in Section 2.2). This is due to the limitation in the data coverage and to the strict criterion used to unambiguously identify desert dust events. It should be noted that this procedure underestimates the actual number of desert dust events observed by ground-based measurements. For instance, during June-July-August in the Caribbean Basin there is essentially continuous dust (e.g., Prospero et al., 2015), which is corroborated in this study with an average of 23-28 connection days in these months.

5.2. Scatterplot AE-AOD in the African and Caribbean areas

The following step of this study focuses on the comparison of the aerosol properties observed in the Caribbean area and the values of the same properties which were observed days before over the African sites. In this way, the impact of the long range transport can be quantified. Figure 7 presents the scatterplot AE-AOD for those days

with aerosol data and air mass connection between the two areas. When the criteria for identifying mineral dust ($AOD \geq 0.2$ and $AE \leq 0.6$) are applied to the global Caribbean-African connected database, four different cases are identified (see Section 2.2).

In the African zone (Fig. 7a), as expected because of the proximity to the Saharan Desert, the influence of the mineral dust aerosol properties is predominant: 86% of the available data have $AOD \geq 0.2$ and $AE \leq 0.6$, (1000 out of 1162 days). We identified the occurrence of 498 dusty days in the Caribbean area, about 42% of the entire global Caribbean-African connected database, but just 484 days (in the period 1996-2014) are shown to be dusty days in the Caribbean area with aerosol origin in the Saharan desert ($D_{AF} + D_{CAR}$ case in Figure 8). Intense dusty days (AOD larger than 0.5) occur in West African and Caribbean in 430 and 67 cases, respectively. This difference is attributable to aerosol load loss during transport between the two regions. Out of the total of 1162 cases 516 meet the dusty criteria only in the African database ($D_{AF} + NoD_{CAR}$ case in figure 8). This decrease in dust loads is also observed in the change of the AE and AOD using ground-based and satellite measurements (see, e.g., Yu et al., 2014). For instance, there are 102 cases in the Caribbean database where $AE > 0.6$ whereas the same air mass yielded $AE < 0.6$ in the African zone days before. In addition, there are possible misidentifications of dusty days with AOD and AE values close to the required thresholds (156 and 59 days in the interval of $0.15 < AOD < 0.20$ in the Caribbean and African zones, respectively). This misidentification can also occur in the “NoD” case, when non-dusty conditions occur. We considered lowering the threshold in AOD to lower values so as to include more cases but this would reduce confidence about the actual presence of dust.

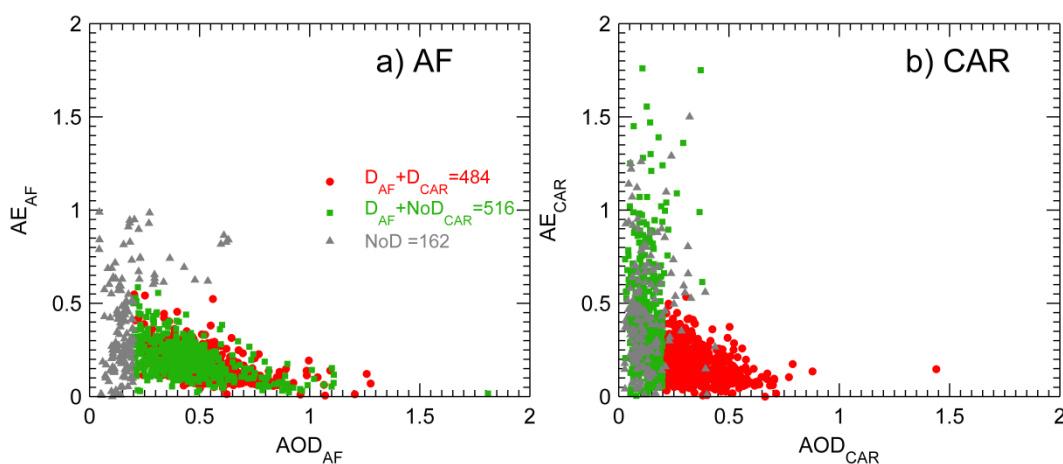


Figure 7. AE-AOD scatterplot for all data days in a) West Africa and b) Caribbean Sea. Red circles are dust days in both Africa (D_{AF}) and Caribbean (D_{CAR}) databases, green squares are dust days in Africa which are not dusty in Caribbean area (NoD_{CAR}), and grey triangles are non-dusty days (NoD) in both areas.

5.3. Differences between AOD in the African zone and the Caribbean area.

Once the connections have been detected, changes in AOD due to the long-range transport over the Atlantic Ocean are studied depending on the AE values. The results are shown in Figure 8. The AOD_{CAR} has been plotted as a function of AOD in the African zone (AOD_{AF}).

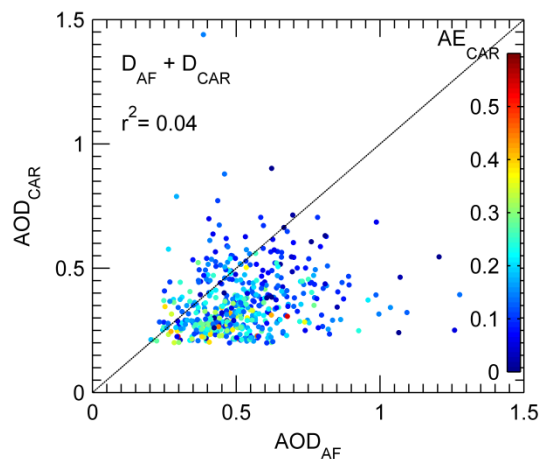


Figure 8. Scatterplot of AOD in the Caribbean (AOD_{CAR}) versus AOD in the African zone (AOD_{AF}). The color bar indicates the AE in the Caribbean zone (AE_{CAR}) when dust is observed in both areas ($D_{AF} + D_{CAR}$ case, see Section 2.2). Solid lines point out no change in AOD data between both areas.

The scatter plot in Fig. 8 shows that there is, as expected, a decrease in AOD in air masses transiting the Atlantic. The mean decrease of AOD between Africa and the Caribbean is 0.16, a decrease of about 30% with respect to the values at Dakar and Cabo Verde. The decreases are related to dust concentration. They are greatest for cases where AOD values are large ($AOD > 0.8$) at the African sites, with decreases up to 70%. In the interval $0.5 < AOD < 0.8$ the decreases are in the range about 28-45% while those in the interval $0.2 < AOD < 0.5$ are in the range 11-27%. These percentages based on long-term and ground-based data are a first approach to assess the estimations done by studies dealing with satellite data. For instance, Yu et al. (2015) have reported, in a latitudinal belt of $10^{\circ}S-30^{\circ}N$, a loss of 70% ($\pm 45-70\%$) between dust amount (in $Tg\ a^{-1}$) leaving West Africa (at $15^{\circ}W$) and the end of the Caribbean area (at $75^{\circ}W$). Hence, our estimations are in line with these findings considering that the measured variable and studied area are not identical.

The cases with low AE values are those cases with a wider variability in AOD difference.. In addition, there are some cases in which AOD is larger in the Caribbean. This effect could be explained by different reasons: inhomogeneity of the dust layer, addition of other aerosol particles in the Caribbean area (such as biomass burning), temporal gaps in the instantaneous measurements that cause non-representative daily averages, cloud contamination not detected by the cloud-screening algorithm, etc.

5.4. Aerosol microphysical properties for African-Caribbean Sea connections

In this section we address the key aerosol microphysical properties for those cases where we demonstrated a back-trajectory connection between the African and Caribbean sites. Figure 9 shows the VPSD for the two cases analyzed before: dust conditions in both areas ($D_{AF} + D_{CAR}$) and only in Africa ($D_{AF} + NoD_{CAR}$). The shape of the VPSD curve for this collection of data in the African side is the same as described in detail in Section 4. The fine mode volume fraction (obtained as the ratio VC_F/VC_T) is on average as low as 0.077.

The VPSD shape in the Caribbean for the $D_{AF} + D_{CAR}$ case is the same as in the African area: average coarse mode volume concentration of $0.22 \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^2$, maximum peak about $2.24 \mu\text{m}$, minor role of fine mode (average fine mode volume concentration of $0.02 \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^2$ peaking at $0.086 \mu\text{m}$, fine mode volume fraction of 0.09). The coarse mode volume concentration decreases from $0.34 \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^2$ in West Africa to $0.22 \mu\text{m}^3/\mu\text{m}^2$ in the Caribbean Sea. Hence, there is a loss about 35% in the coarse mode concentration between both areas caused by the long-range transport over the Atlantic Ocean.

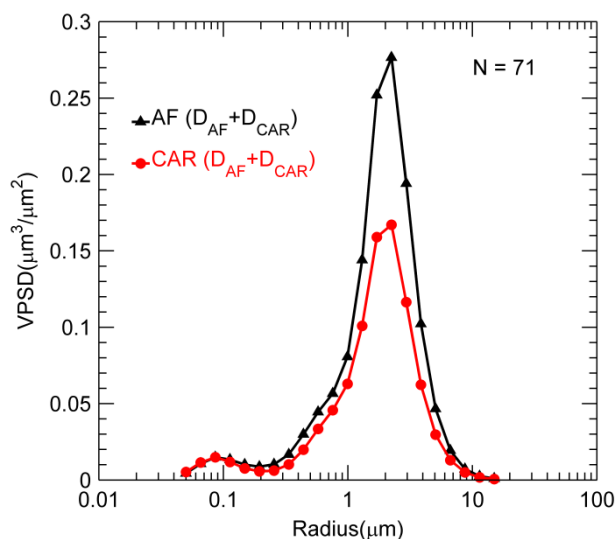


Figure 9. VPSD in the African (AF) and the Caribbean (CAR) areas under desert dust conditions ($D_{AF} + D_{CAR}$ case, see Section 2.2).

To quantify the change in the aerosol size caused by the long-range transport, Figure 10 shows the histogram of the differences between the effective radius of the total size distribution (ER_T) in the two areas. Most of the differences in the ER_T values are positive, thus indicating the size distribution in West Africa generally having larger particles than in the Caribbean Sea. The differences in the effective radii are mostly confined (about 70% of the cases) between no change and a decrease in the effective radius about $0.3 \mu\text{m}$ between both areas. The maximum of occurrence is found for a decrease about 0.2

μm . Negative differences (15% of the cases), meaning larger particle size in the Caribbean area, could be attributed to the presence of other aerosol layer (e.g., sea salt) in the atmospheric column.

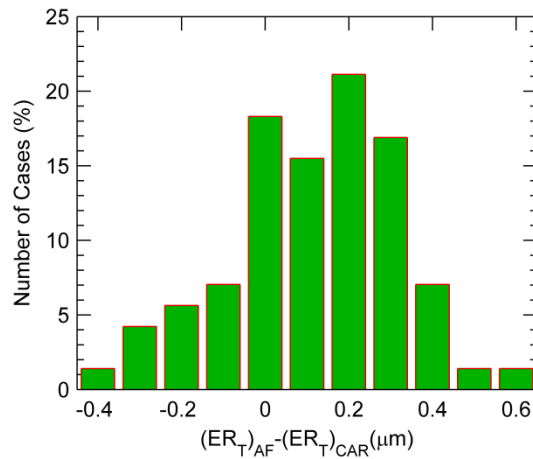


Figure 10. Histogram of the differences between the total effective radii in the African zone and in the Caribbean area for those cases with connected desert dust conditions in both areas ($D_{AF} + D_{CAR}$ case).

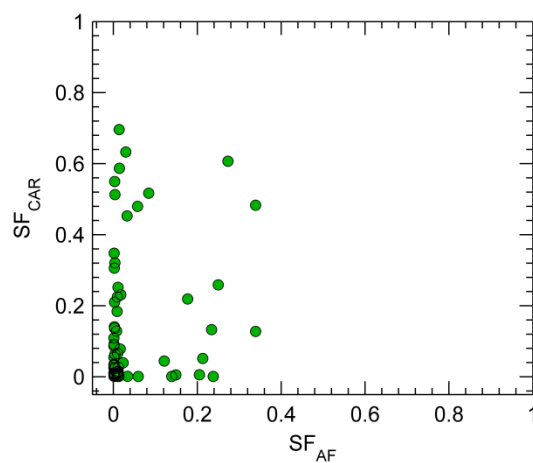


Figure 11. Sphericity fraction values in the African zone and in the Caribbean area for those cases with desert dust in both areas.

The third microphysical property studied in this study is the fraction of spherical particles found in the inversion process (for details, see Dubovik et al., 2006). The results are presented in Figure 11. This figure shows that in the African zone there is large predominance of non-spherical particles. About 80% and 53% of the values in the African and Caribbean zones correspond with basically complete non-sphericity ($SF < 0.05$), respectively. Overall, in 32 out of 71 cases (45%) there is no change between both areas and the shape of the particles is predominantly non-spherical. Cases with sphericity fraction below 0.05 in African sites display a wide variability in the observed fraction in

the Caribbean sites, even achieving values of 0.7. This increase could be explained by the mixture of mineral dust with other (spherical) aerosol particles, such as maritime aerosols. Note that we use column observations; therefore the mixture in this case does not mean that dust and other aerosol particles are necessarily together. They can be separated in different atmospheric layers (e.g., elevated dust layer and boundary layer, Groß et al., 2015). The measurements at Barbados collect dust in the boundary layer (Prospero, 1999; Smirnov et al., 2000; Yu et al., 2014), so that dust simultaneously occur with sea-salt or other aerosol layers (e.g., Ansmann et al., 2009; Toledano et al., 2011; Groß et al., 2011, ; 2016). However the highest concentrations of dust are found in the elevated SAL (Yu et al., 2014) where there are no significant concentrations of sea salt aerosol (Savoie et al., 2002).

5.5. Aerosol radiative properties for African-Caribbean Sea connections

Figure 12 shows the main radiative properties (SSA, g , REFR, and REFI) in order to compare whether the optical properties of the mineral aerosol as detected in the African zone, remain the same after the long-range transport or exhibit any significant difference over the Caribbean. Taking into account the uncertainty estimates and the observed variability, the absorption power (SSA in Figure 12a and REFI in Figure 12c) is the same in both areas. The SSA at Dakar and Cabo Verde increases with wavelength: from 0.94 at 440 nm up to 0.98 at 670, 870, and 1020 nm. These figures are in line with previous studies in this area (Dubovik et al., 2002; Eck et al., 2010; Kim et al., 2011; Toledano et al., 2011; Giles et al., 2012, among others) but also at various Spanish and Mediterranean sites during desert dust outbreaks (e.g., Meloni et al., 2006; Cachorro et al., 2010; Valenzuela et al., 2012; Burgos et al., 2016). The SSA in dust events in the Caribbean Basin is essentially identical to that at the African sites. The same is true for REFI: 0.0025 at 440 nm and 0.001-0.0015 in the interval 670-1020 nm. The values in the visible and near infrared ranges are slightly larger than those reported by Dubovik et al. (2002) which were about 0.0007; their value at 440 nm is very similar to the our value. There is no significant change in the REFR either, being the mean real part of the refractive index in the African and Caribbean database, about 1.45 ± 0.01 . This value is slightly lower than the reported by Dubovik et al. (2002) which was about 1.48. Finally, the asymmetry factor g at 440 nm decreases slightly from 0.77 in African sites to 0.755 in the Caribbean. The g values reported in this study are slightly larger than the reported by previous studies for desert dust in Africa (e.g., Dubovik et al., 2002). Overall, intensive optical properties (both absorption and scattering quantities) do not change in spite of the long range transport.

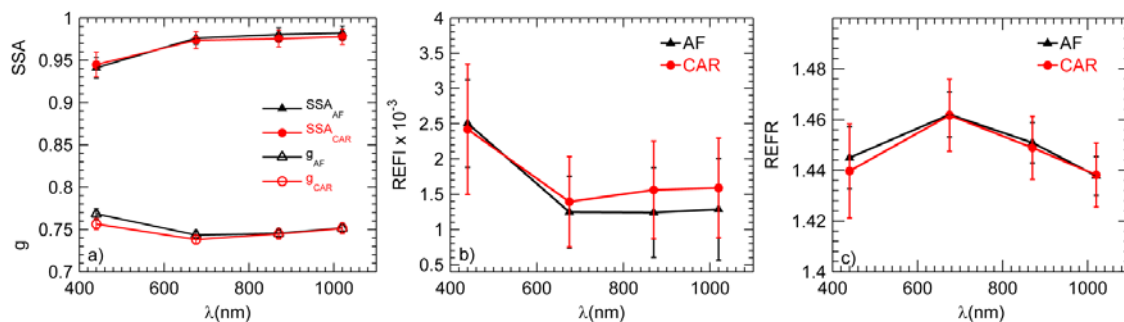


Figure 12. a) Single scattering albedo (SSA) and asymmetry parameter (g), b) Imaginary part of the refractive index (REFI), c) Real part of the refractive index (REFR) for those cases with desert dust in both African zone (black lines) and Caribbean area (red lines).

Conclusions

We characterized the changes in aerosol properties during long-range aerosol transport between Africa and Caribbean Sea using AERONET sun photometer measurements over the period 1996-2014. We selected two AERONET sites in the eastern Atlantic – Dakar and Cabo Verde – to characterize the properties of the air masses emerging from West Africa and five AERONET sites in the eastern Caribbean to make identical measurements on these same air masses about one week later. We obtained over 5000 values that qualified for our study. The seasonal cycles of AOD (at 440 nm wavelength) and AE in the two areas are similar between May and September with maximum AOD (0.6 and 0.3 in Africa and the Caribbean Basin, respectively) and minimum AE (about 0.2 in both areas) in June. The volume particle size distribution (VPSD) shows the dominant influence of coarse particles throughout the year in both areas, with maximum values during the summer months when dust transport is at a maximum.

We used HYSPLIT air mass back-trajectories to identify days when air parcels passing over the Caribbean sites also overpassed one or both of the African sites. Overall, 3174 trajectory-linked days were identified in the 1996-2014 period of which 1162 pairs of data qualified for aerosol comparison analysis. For the cases in which dust is detected at the African and Caribbean sites (484 cases, 15% of the total connection days), the AOD shows a mean decrease of about 0.16 AOD-units or -30% after transit. The largest decreases were seen for the larger AOD values which imply larger losses during transport.

When aerosol inversion products are analyzed, only 71 days satisfied the selection criteria. In comparing inversions products before and after transit of the Atlantic, we could find no substantial changes in the shape of the volume particle size distribution and the spectral dependence of absorbing and scattering power. The analysis of the total effective radius shows larger aerosol particles, differences between 0 and +0.3 μm in

the 70% of the cases, in the West African area. Non-spherical particles are the predominant shape in both areas. The change of these quantities can be explained because of the mixture of mineral dust with other aerosol layers and the early deposition of larger particles. Therefore, intensive radiative properties do not change significantly in spite of the long range transport.

Acknowledgments

The authors gratefully acknowledge the NASA AERONET program for the very valuable data used in this study. We thank Brent Holben (Barbados, La_Parguera), Didier Tanre (Capo_Verde, Dakar), and Olga Mayol-Bracero (Cape San Juan) for their effort in establishing and maintaining their sites. This work has received funding from the European Union's Horizon 2020 research and innovation programme under grant agreement N° 654109 (ACTRIS-2). The authors are grateful to Spanish MINECO for the financial support of the IJCI-2014-19477 grant, PTA2014-09522-I grant, and POLARMOON project (ref. CTM2015-66742-R). We also thank 'Consejería de Educación' of 'Junta de Castilla y León' for supporting the GOA-AIRE project (ref. VA100P17). Prospero received support from NSF AGS-0962256 and NASA NNX12AP45G.

References

See reference section of the PhD Thesis

Capítulo 7. Conclusiones y líneas futuras

Con las medidas obtenidas mediante fotometría solar se ha dado respuesta a la identificación y análisis de propiedades de distintos tipos de aerosol, dando un mayor énfasis a la identificación de aerosol desértico. Esta identificación y análisis ha sido posible debido a que se han analizado series largas de datos (la más extensa consta de 19 años). De este modo se ha logrado establecer climatologías de las principales propiedades del aerosol desértico, cuando es emitido en origen y cuando ha sufrido un transporte de varios días sobre el océano Atlántico. Las principales conclusiones obtenidas en esta tesis doctoral son las siguientes:

- En esta tesis doctoral se recoge el primer estudio de comparación a la hora de identificar eventos de aerosol con distintas técnicas de medida. Las bases de datos de espesor óptico en columna y en superficie, por separado tienen ventajas y limitaciones. Los datos de aerosol en columna se basan en mediciones de radiación solar directa para las cuales el cielo debe estar libre de nubes en la dirección del sol, condición relevante para sitios que presenten una predominancia de condiciones nubosas. Por el contrario, las mediciones de PM_{10} no están limitadas por las condiciones del cielo, pero no permiten la detección de eventos en la troposfera superior. Pero una vez que combinamos ambas, los resultados de la comparación de los diferentes inventarios sugieren que el uso simultáneo de datos de aerosoles en columna y de superficie proporciona el inventario más fiable.

Dados los inconvenientes (gran esfuerzo por parte del observador, problemas asociados a la toma de datos, complejidad en la interpretación conjunta de distinta información) de todas las metodologías existentes actuales, se hace necesario la implementación de un inventario lo más automatizado posible. Se propone, como alternativa a los métodos propuestos hasta la fecha, un método automatizado basado en el análisis del AOD en modo fino y grueso dado que los parámetros AOD_F y AOD_C pueden ser utilizados de manera fiable para lograr identificar eventos de aerosol a gran escala y permitiendo atribuir dicho evento de alta turbiedad a un único modo (grueso o fino) o a una situación de mezcla.

- El análisis de la serie temporal de espesor óptico de aerosoles durante la campaña SALTRACE revela una sucesión continua de eventos de polvo, sólo interrumpida durante períodos cortos en los que se observó aerosol marino. También se ha realizado un estudio de dependencia de la longitud de onda del espesor óptico de aerosoles con el fin de proporcionar un valor estimado a la longitud de onda de $2\mu m$, necesaria para el análisis de datos aerosoles con un lidar de viento (Chouza et al., 2015), siendo necesario un ajuste de segundo orden para poder observar correctamente la variación espectral medida en el infrarrojo cercano.

Se ha realizado un análisis novedoso en las inversiones de datos del fotómetro Cimel, al incluir el canal de 1640nm además de los canales estándar en el rango 440-1020nm. De los datos obtenidos, se observa un cambio significativo en los valores del modo grueso de la distribución de tamaños y del radio efectivo al ampliar el rango espectral, mostrando cierto cambio hacia radios mayores. La fracción de modo fino de la distribución de tamaños es en promedio 0.09, lo que indica un claro predominio del modo grueso. Durante los casos de aerosol marino (sin polvo), el radio efectivo del modo grueso es mayor que el del polvo.

La comparación de los resultados obtenidos de fotómetros solares con los obtenidos in situ sigue siendo objeto de estudio. Incluso si se encuentra una muy buena correlación entre la concentración de polvo a nivel del suelo y espesor óptico de aerosoles, la comparación de otras variables como la distribución del tamaño de partículas requiere considerables esfuerzos experimentales (por ejemplo, mediciones adicionales desde aviones) y, por lo tanto, sigue siendo un desafío.

- Se ha establecido la primera climatología de aerosoles en la región del Caribe (en el período 1996-2014) obteniendo un constante aumento en el valor de AOD desde valores bajos (0.1 en enero) hasta el máximo en junio ($AOD_{440nm} = 0.3$ y $AE = 0.2$) para después observar una tendencia decreciente hasta alcanzar en diciembre valores similares a los de enero. Los valores medios de AE indican una predominancia de partículas gruesas durante todo el ciclo anual, más acusada en los meses centrales del año (junio-agosto). Además, se ha realizado una climatología de aerosoles en la región de Cabo Verde, al oeste de África, para el mismo período de tiempo, para su posterior comparación. Obteniendo un valor máximo mensual de $AOD_{440nm} = 0.6$ y un mínimo de $AE = 0.2$ para el mes de junio. Una vez analizadas todas las conexiones de masas de aire que conectan ambas zonas de estudio, se observa una disminución media aproximada de 0.16 en AOD, equivalente a una pérdida del 30% después del transporte de África a la zona del Caribe. Después de analizar los productos de inversión para obtener las propiedades ópticas y microfísicas de los aerosoles, y comparar dichos valores a ambos lados del Atlántico, no se encuentran cambios sustanciales en la forma de la distribución de tamaños de las partículas, predominando en ambas zonas el modo grueso en proporción similar, ni en la dependencia espectral del poder de absorción y dispersión, ni en la forma, ya que las partículas no esféricas son las predominantes en ambas áreas. El análisis del radio efectivo total muestra partículas de aerosol más grandes, con diferencias entre 0 y $+0.3\mu m$ en el 70% de los casos, en el área de África Occidental..

En definitiva, una vez estudiada la literatura y comparados todos los trabajos acerca de detección de eventos de alta turbiedad, se postuló la necesidad de desarrollar un

método automatizado de detección de eventos de alta turbiedad. De esta manera se reducen los inconvenientes que poseen los métodos de inspección visual por parte de un investigador. Por otra parte, es muy importante profundizar en el estudio de las propiedades de los aerosoles. En concreto, al incluir el canal de medida del fotómetro CIMEL de 1640nm para el análisis espectral de AOD y en el estudio de los productos de inversión. De esta manera, se ha podido observar un cambio significativo en los valores del modo grueso de la distribución de tamaños y del radio efectivo al ampliar el rango espectral. Esta tesis doctoral pone de relevancia el uso de series temporales largas, que permiten la caracterización de la evolución estacional de parámetros fundamentales de aerosoles (carga y tamaño) y que son la base para cuantificar el impacto que supone que los aerosoles sean transportados grandes distancias durante varios días. A pesar de la extensa bibliografía sobre el transporte de polvo sahariano hacia el continente americano, esta tesis doctoral presenta el primer análisis simultáneo a ambos lados del océano Atlántico utilizando series de 20 años de datos. El trabajo de investigación desarrollado en esta tesis doctoral ha dado a conocer resultados detallados a cerca del número de días, en promedio, en los que el aerosol sahariano es transportado hasta la cuenca del Caribe, así como el porcentaje de pérdida de carga de aerosol que se produce durante este transporte. Y cómo, a pesar de este largo proceso, se mantienen prácticamente invariantes tanto sus propiedades ópticas como sus propiedades microfísicas.

Una vez expuestos los principales resultados de esta tesis doctoral y las conclusiones obtenidas se puede comprobar que tanto los objetivos como las tareas necesarias para su resolución han ido cumpliéndose de manera satisfactoria. El trabajo en su conjunto nos proporciona una visión detallada de la detección de eventos de alta turbiedad, en particular del polvo mineral. Además, el estudio minucioso de las propiedades del aerosol sahariano antes y después del transporte a lo largo del océano Atlántico, apoyado en series de datos largas, nos ha indicado en qué manera cambian sus propiedades microfísicas y ópticas.

Líneas futuras

Demostrada la importancia del estudio automatizado de eventos de alta turbiedad, este trabajo de tesis doctoral deja la puerta abierta para continuar realizando un trabajo más detallado en el desarrollo de una metodología automatizada para la detección de eventos de alta turbiedad, y comenzar a aplicarlo sobre las series de largo plazo disponibles en la red AERONET. De este modo se puede aplicar la metodología propuesta en este trabajo para la detección de eventos de alta turbiedad en para series temporales largas y en amplias zonas espaciales que ayuden a visualizar la ocurrencia de determinados eventos de aerosol y cuantificar su impacto.

También se abre la posibilidad al uso de este método para el estudio en profundidad de la campaña de medidas A-LIFE, para el estudio del aerosol de origen desértico en la isla de Chipre, que ha sido una continuación de la campaña de medidas SALTRACE. En ella se propone realizar un estudio intensivo de las propiedades del aerosol medido en Chipre durante la campaña, comparando los datos de columna del fotómetro CIMEL de la red AERONET con medidas de radiación solar, así como con los datos en superficie y los lidar instalados en las mismas ubicaciones que los fotómetros mencionados. De esta manera, se puede estudiar la procedencia de cada evento e investigar diferencias entre ellos según la fuente del polvo mineral observado. Dado que para la campaña de medidas A-LIFE sí se utilizó el último modelo del fotómetro CIMEL (solar y lunar) también sería muy interesante evaluar los eventos a lo largo del día y la noche para observar la evolución de dichos eventos de una manera más continua.

Igualmente, se puede completar el estudio hasta la actualidad del transporte de aerosol de origen africano hasta el Caribe utilizando la metodología aportada en este trabajo y ver, de esta manera, si se pueden añadir más episodios al estudio o si se detecta algún tipo de tendencia a largo plazo en la frecuencia o intensidad de los episodios. La aportación de más eventos con productos de inversión disponibles permitirá realizar una comparación más precisa de las propiedades ópticas y microfísicas del polvo mineral después de su transporte entre la zona de África Occidental y el Caribe oriental.

Bibliografía

- Alizadeh-Choozari, Omid & Zawar-Reza, Peyman & Sturman, Andrew. The global distribution of mineral dust and its impacts on the climate system: A review. *Atmospheric Research*. 138. 152–165. 10.1016/j.atmosres.2013.11.007, 2014.
- Ångström, A.: Techniques of determining the turbidity of the atmosphere, *Tellus*, 13, 214–223, 1961.
- Ansmann, A., H. Baars, M. Tesche, D. Müller, D. Althausen, R. Engelmann, T. Pauliquevis, and P. Artaxo: Dust and smoke transport from Africa to South America: Lidar profiling over Cape Verde and the Amazon rainforest, *Geophys. Res. Lett.*, 36, L11802, doi:10.1029/2009GL037923, 2009.
- Ansmann, A., Petzold, A., Kandler, K., Tegen, I., Wendisch, M., Müller, D., Weinzierl, B., Müller, T., and Heintzenberg, J.: Saharan Mineral Dust Experiments SAMUM–1 and SAMUM–2: What have we learned?, *Tellus B*, 63, 403–429, 2011.
- Arimoto, R., B. J. Ray, R. A. Duce, A. D. Hewitt, R. Boldi, and A. Hudson, Concentrations, sources, and fluxes of trace elements in the remote marine atmosphere of New Zealand, *Journal of Geophysical Research*, 95(D13), 22389-22405, 1990.
- Arimoto, R., R. A. Duce, B. J. Ray, W. G. Ellis Jr, J. D. Cullen, and J. T. Merrill, Trace elements in the atmosphere over the North Atlantic, *Journal of Geophysical Research*, 100(D1), 1199-1213, 1995.
- Bennouna, Y.S., Cachorro, V.E., Mateos, D., Burgos, M.A., Toledano, C., Torres, B., de Frutos, A.M., 2016. Long-term comparative study of columnar and surface mass concentration aerosol properties in a background environment, *Atmospheric Environment* 140, 261-272.
- Bennouna, Y.S., Cachorro, V.E., Torres, B., Toledano, C., Berjón, A., de Frutos, A.M., Alonso-Fernandez Coppel, I. 2013. Atmospheric turbidity determined by the annual cycle of the aerosol optical depth over north-center Spain from ground (AERONET) and satellite (MODIS), *Atmospheric Environment* 67, 352-364.
- Boucher, O., Randall, D., Artaxo, P., Bretherton, C., Feingold, G., Forster, P., Kerminen, V.M., Kondo, Y., Liao, H., Lohmann, U., Rasch, P., Satheesh, S.K., Sherwood, S., Stevens, B., Zhang, X.Y., 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 2013* [Stocker, T.F., Qin, D., Plattner, G.K., Tignor, M., Allen, S.K., Boschung, J., Nauels, A., Xia, Y., Bex, V., Midgley, P.M.]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York NY, USA.

- Bozlaker, A., J. M. Prospero, M. P. Fraser, and S. Chellam. 2013. "Quantifying the contribution of long-range Saharan dust transport on particulate matter concentrations in Houston, Texas, using detailed elemental analysis." *Environmental Science and Technology* 47 (18):10179-10187. doi: 10.1021/es4015663.
- Burgos, M., Mateos, D., Cachorro, V., Toledano, C., and de Frutos, A.: Aerosol properties of mineral dust and its mixtures in a regional background of north-central Iberian Peninsula, *Sci. Total Environ.*, 572, 1005–1019, <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.08.001>, 2016.
- Cabello, M., Orza, J.A.G., Barrero, M.A., Gordo, E., Berasaluce, A., Cantón, L., Dueñas, C., Fernández, M.C., Pérez, M., 2012. Spatial and temporal variation of the impact of an extreme Saharan dust event. *J. Geophys. Res.* 117, D11204. <http://dx.doi.org/10.1029/2012JD017513>.
- Cabello, M., Orza, J.A.G., Dueñas, C., Liger, E., Gordo, E., Cañete, S., 2016, Back-trajectory analysis of African dust outbreaks at a coastal city in southern Spain: Selection of starting heights and assessment of African and concurrent Mediterranean contributions, *Atmos. Env.* 140, 10-21.
- Cachorro, V. E., Burgos, M.A., Mateos, D., Toledano, C., Bennouna, Y., Torres, B., de Frutos, A.M., Herguedas, A., 2016. Inventory of African desert dust events in the North-central Iberian Peninsula in 2003-2014 based on Sun photometer and PMx data. *Atmos Chem Phys.* 16, 8227-8248. doi:10.5194/acp-16-8227-2016.
- Cachorro, V. E., Toledano, C., Antón, M., Berjón, A., de Frutos, A.M., Vilaplana, J. M., Arola, A., Krotkov, N.A.: Comparison of UV irradiances from Aura/Ozone Monitoring Instrument (OMI) with Brewer measurements at El Arenosillo (Spain) – Part 2: Analysis of site aerosol influence. *Atmos. Chem. Phys.* 10, 11867-11880. doi:10.5194/acp-10-11867-2010, 2010.
- Cachorro, V. E., Toledano, C., Sorribas, M., Berjon, A., de Frutos A. M., and Laulainen, N.: An "in situ" calibration-correction procedure (KCICLO) based on AOD diurnal cycle: Comparative results between AERONET and reprocessed (KCICLO method) AOD-alpha data series at El Arenosillo, Spain, *J. Geophys. Res.*, 113, D02207, <https://doi.org/10.1029/2007JD009001>, 2008.
- Carlson, T. N. and Prospero, J. M.: The Large-Scale Movement of Saharan Air Outbreaks over the Northern Equatorial Atlantic, *J. Appl. Meteorol.*, 11, 283–297, [https://doi.org/10.1175/15200450\(1972\)011<0283:TLSMOS>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/15200450(1972)011<0283:TLSMOS>2.0.CO;2), 1972.
- Chouza, F., Reitebuch, O., Groß, S., Rahm, S., Freudenthaler, V., Toledano, C., and Weinzierl, B.: Retrieval of aerosol backscatter and extinction from airborne coherent

- Doppler wind lidar measurements, *Atmos. Meas. Tech.*, 8, 2909–2926, <https://doi.org/10.5194/amt-8-2909-2015>, 2015.
- Chouza, F., Reitebuch, O., Benedetti, A., and Weinzierl, B.: Saharan dust long-range transport across the Atlantic studied by an airborne Doppler wind lidar and the MACC model, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 11581–11600, doi:10.5194/acp-16-11581-2016, 2016.
- Cimel-Electronique. Sunphotometer User manual version 4.6, 2004.
- Colarco, P., O. Toon, and B. Holben: Saharan dust transport to the Caribbean during PRIDE: 1. Influence of dust sources and removal mechanisms on the timing and magnitude of downwind aerosol optical depth events from simulations of in situ and remote sensing observations, *J. Geophys. Res.*, 108(D19), 8589, doi:10.1029/2002JD002658, 2003.
- DeMott P. J., Prenni A. J., Liu X., Kreidenweis S. M., Petters M. D., Twohy C. H., Richardson, T. Eidhammer M. S., and Rogers D. C. Predicting global atmospheric ice nuclei distributions and their impacts on climate. *Proceedings of the National Academy of Sciences*. 107 (D25), 11217–11222, 2010.
- Di Biagio, C., A. di Sarra, D. Meloni, F. Monteleone, S. Piacentino, and D. Sferlazzo (2009), Measurements of Mediterranean aerosol radiative forcing and influence of the single scattering albedo, *J. Geophys. Res.*, 114, D06211, doi:10.1029/2008JD011037
- Draxler, R. and Rolph, G. HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website (<http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>) NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD, 2003.
- Dubovik, O. and M. D. King. A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from Sun and sky radiance measurements. *J. Geophys. Res.*, 105, 20673–20696, 2000a.
- Dubovik, O., Holben, B., Eck, T., Smirnov, A., Kaufman, Y., King, M. D., Tanre, D., and Slutsker, I.: Variability of Absorption and Optical Properties of Key Aerosol Types Observed in Worldwide Locations, *J. Atmos. Sci.*, 59, 590–608, 2002.
- Dubovik, O., Sinyuk, A., Lapyonok, T., Holben, B. N., Mishchenko, M., Yang, P., Eck, T. F., Volten, H., Muñoz, O., Veihelmann, B., van der Zande, W. J., Léon, J.-F., Sorokin, M., and Slutsker, I.: Application of spheroid models to account for aerosol particle nonsphericity in remote sensing of desert dust, *J. Geophys. Res.*, 111, D11208, <https://doi.org/10.1029/2005JD006619>, 2006.

- Dubovik, O., Smirnov, A., Holben, B. N., King, M. D., Kaufman, Y. J., Eck, T. F., and Slutsker, I.: Accuracy assessments of aerosol optical properties retrieved from Aerosol Robotic Network (AERONET) Sun and sky radiance measurements, *J. Geophys. Res.*, 105, 9791–9806, 2000.
- Durán, P. Medidas espectrorradiométricas para la determinación de componentes atmosféricos (ozono, vapor de agua y aerosoles) y modelización del intercambio radiativo en la atmósfera, Tesis Doctoral, Universidad de Valladolid, 1997.
- EC, 2010. Guidance on the quantification of the contribution of natural sources under the EU Air Quality Directive 2008/50/EC. Draft version 2, (presented to AQ Committee in June 2010); May 2010.
- Eck, T. F., Holben, B. N., Sinyuk, A., Pinker, R. T., Goloub, P., Chen, H., Chatenet, B., Li, Z., Singh, R. P., Tripathi, S. N., Reid, J. S., Giles, D. M., Dubovik, O., O'Neill, N. T., Smirnov, A., Wang, P., Xia, X.: Climatological aspects of the optical properties of fine/coarse mode aerosol mixtures. *J. Geophys. Res.* 115, D19205. doi:10.1029/2010JD014002, 2010.
- Eck, T.F., B.N.Holben, J.S. Reid, O. Dubovik, A. Smirnov, N.T. O'Neill, I. Slutsker, and S. Kinne. The wavelength dependence of the optical depth of biomass burning, urban and desert dust aerosols, *J. Geophys. Res.*, 104, 31 333-31 350, 1999.
- Escudero, M., Castillo, S., Querol, X., Avila, A., Alarcón, M., Viana, M. M., Alastuey, A., Cuevas, E., Rodríguez S., 2005. Wet and dry African dust episodes over eastern Spain. *J. Geophys. Res.* 110, D18S08. doi:10.1029/2004JD004731.
- Escudero, M., Querol, X., Pey, J., Alastuey, A., Pérez, N., Ferreira, F., Alonso, S., Cuevas, E., 2007. A methodology for the quantification of the net African dust load in air quality monitoring networks. *Atmos. Environ.* 41(26), 5516-5524. doi: 10.1016/j.atmosenv.2007.04.047.
- Freudenthaler, V., Esselborn, M., Wiegner, M., Heese, B., Tesche, M., Ansmann, A., Müller, D., Althausen, D., Wirth, M., Fix, A., Ehret, G., Toledano, C., Garhammer, M., and Seefeldner, M.: Depolarization ratio profiling at several wavelengths in pure Saharan dust during SAMUM 2006, *Tellus B*, 61, 165–179, 2009.
- Freudenthaler, V.: About the effects of polarising optics on lidar signals and the 90 calibration, *Atmos. Meas. Tech.*, 9, 4181– 4255, <https://doi.org/10.5194/amt-9-4181-2016>, 2016.
- García, M. I., Rodríguez, S., and Alastuey, A.: Impact of North America on the aerosol composition in the North Atlantic free troposphere, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 7387-7404, <https://doi.org/10.5194/acp-17-7387-2017>, 2017.

- Gasteiger, J. and Freudenthaler, V.: Benefit of depolarization ratio at $\lambda = 1064$ nm for the retrieval of the aerosol microphysics from lidar measurements, *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 3773–3781, <https://doi.org/10.5194/amt-7-3773-2014>, 2014.
- Gasteiger, J., Groß, S., Sauer, D., Haarig, M., Ansmann, A., and Weinzierl, B.: Particle settling and vertical mixing in the Saharan Air Layer as seen from an integrated model, lidar, and in situ perspective, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 297–311, <https://doi.org/10.5194/acp-17-297-2017>, 2017.
- Gasteiger, J., Wiegner, M., Gross, S., Freudenthaler, V., Toledano, C., Tesche, M., and Kandler, K.: Modeling lidar-relevant optical properties of complex mineral dust aerosols, *Tellus B*, 63, 725–741, <https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2011.00559.x>, 2011.
- Giles, D. M., Holben, B. N., Eck, T. F., Sinyuk, A., Smirnov, A., Slutsker, I., Dickerson, R. R., Thompson, A. M., Schafer, J. S.: An analysis of AERONET aerosol absorption properties and classifications representative of aerosol source regions. *J. Geophys. Res.* 117, D17203. doi:10.1029/2012JD018127, 2012.
- Giles, D. M., Sinyuk, A., Sorokin, M. G., Schafer, J. S., Smirnov, A., Slutsker, I., Eck, T. F., Holben, B. N., Lewis, J. R., Campbell, J. R., Welton, E. J., Korokin, S. V., and Lyapustin, A. I.: Advancements in the Aerosol Robotic Network (AERONET) Version 3 database – automated near-real-time quality control algorithm with improved cloud screening for Sun photometer aerosol optical depth (AOD) measurements, *Atmos. Meas. Tech.*, 12, 169–209, <https://doi.org/10.5194/amt-12-169-2019>, 2019.
- Gkikas, A., Basart, S., Hatzianastassiou, N., Marinou, E., Amiridis, V., Kazadzis, S., Pey, J., Querol, X., Jorba, O., Gassó, S., Baldasano, J. M., 2016a. Mediterranean intense desert dust outbreaks and their vertical structure based on remote sensing data, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 8609–8642, doi:10.5194/acp-16-8609-2016.
- Gkikas, A., Hatzianastassiou, N., Mihalopoulos, N., Katsoulis, V., Kazadzis, S., Pey, J., Querol, X., Torres, O., 2013. The regime of intense desert dust episodes in the Mediterranean based on contemporary satellite observations and ground measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 12135–12154, doi:10.5194/acp-13-12135-2013.
- Gkikas, A., Hatzianastassiou, N., Mihalopoulos, N., Torres, O., 2016b. Characterization of aerosol episodes in the greater Mediterranean Sea area from satellite observations (2000–2007), *Atmospheric Environment* 128, 286–304.
- Goudie, A. and Middleton, N.: Saharan dust storms: nature and consequences., *Earth-Sci. Rev.*, 56, 179–204, 2001.

- Groot Zwaaftink, C. D., H. Grythe, H. Skov, and A. Stohl (2016), Substantial contribution of northern high-latitude sources to mineral dust in the Arctic, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, 13,678–13,697, doi:10.1002/2016JD025482.
- Groß, S., Freudenthaler, V., Schepanski, K., Toledano, C., Schäfler, A., Ansmann, A., and Weinzierl, B.: Optical properties of long-range transported Saharan dust over Barbados as measured by dual-wavelength depolarization Raman lidar measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 11067–11080, <https://doi.org/10.5194/acp-15-11067-2015>, 2015.
- Groß, S., Gasteiger, J., Freudenthaler, V., Müller, T., Sauer, D., Toledano, C., and Ansmann, A.: Saharan dust contribution to the Caribbean summertime boundary layer – a lidar study during SALTRACE, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 11535–11546, <https://doi.org/10.5194/acp-16-11535-2016>, 2016.
- Groß, S., Tesche, M., Freudenthaler, V., Toledano, C., Wiegner, M., Ansmann, A., Althausen, D. and Seefeldner, M. (2011), Characterization of Saharan dust, marine aerosols and mixtures of biomass-burning aerosols and dust by means of multi-wavelength depolarization and Raman lidar measurements during SAMUM 2. *Tellus B*, 63: 706–724. doi:10.1111/j.1600-0889.2011.00556.x
- Guirado, C. *Caracterización de las propiedades de los aerosoles en columna en la región subtropical*, Tesis Doctoral, Universidad de Valladolid, 2015.
- Guirado, C., Cuevas, E., Cachorro, V. E., Toledano, C., Alonso-Pérez, S., Bustos, J. J., Basart, S., Romero, P. M., Camino, C., Mimouni, M., Zeudmi, L., Goloub, P., Baldasano, J. M., de Frutos, A. M.: Aerosol characterization at the Saharan AERONET site Tamanrasset. *Atmos. Chem. Phys.* 14(21), 11753-11773. doi:10.5194/acp-14-11753-2014, 2014.
- Haarig, M., Ansmann, A., Althausen, D., Klepel, A., Groß, S., Freudenthaler, V., Toledano, C., Mamouri, R.-E., Farrell, D. A., Prescod, D. A., Marinou, E., Burton, S. P., Gasteiger, J., Engelmann, R., and Baars, H.: Triple-wavelength depolarization ratio profiling of Saharan dust over Barbados during SALTRACE in 2013 and 2014, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 10767–10794, <https://doi.org/10.5194/acp-17-10767-2017>, 2017.
- Hansen J. E. & L. D. Travis. Light scattering in planetary atmospheres. *Space Sci. Rev.* 16, 527-610, doi:10.1007/BF00168069, 1974.
- Haywood, J.M., and Boucher, O. Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: A review. *Rev. Geophys.*, 38, 513–543, doi: 10.1029/1999RG000078, 2000.
- Heinold, B., Tegen, I., Schepanski, K., Tesche, M., Esselborn, M., Freudenthaler, V., Gross, S., Kandler, K., Knippertz, P., Mueller, D., Schladitz, A., Toledano, C., Weinzierl, B.,

- Ansmann, A., Althausen, D., Mueller, T., Petzold, A., and Wiedensohler, A.: Regional modelling of Saharan dust and biomass-burning smoke Part I: Model description and evaluation, *Tellus B*, 63, 781–799, <https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2011.00570.x>, 2011.
- Heintzenberg, J.: The SAMUM-1 experiment over Southern Morocco: overview and introduction, *Tellus B*, 61, 2–11, 2009.
- Holben, B. N., Eck, I., Slutsker, I., Tanré, D., Buis, J. P., Setzer, A., Vermote, E., Smirnov, A.: AERONET - A federated instrument network and data archive for aerosol characterization. *Remote. Sens. Environ.* 66(1), 1-16. doi: 10.1016/S0034-4257(98)00031-5, 1998.
- Holben, B.N., D. Tanre, A. Smirnov, T.F. Eck, I. Slutsker, N. Abuhassan, W.W. Newcomb, J. Schafer, B. Chatenet, F. Lavenue, Y.J. Kaufman, J. Vande Castle, A. Setzer, B. Markham, D. Clark, R. Frouin, R. Halthore, A. Karnieli, N.T. O'Neill, C. Pietras, R.T. Pinker, K. Voss, and G. Zibordi. An emerging ground-based aerosol climatology: Aerosol Optical Depth from AERONET, *J. Geophys. Res.*, 106, 12067-12097, 2001.
- Horowitz, H. M., Garland, R. M., Thatcher, M., Landman, W. A., Dedekind, Z., van der Merwe, J., and Engelbrecht, F. A.: Understanding the seasonality and climatology of aerosols in Africa through evaluation of CCAM aerosol simulations against AERONET measurements, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, <https://doi.org/10.5194/acp-2017-250>, in review, 2017.
- Huneus, N., Schulz, M., Balkanski, Y., Griesfeller, J., Prospero, J., Kinne, S., Bauer, S., Boucher, O., Chin, M., Dentener, F., Diehl, T., Easter, R., Fillmore, D., Ghan, S., Ginoux, P., Grini, A., Horowitz, L., Koch, D., Krol, M. C., Landing, W., Liu, X., Mahowald, N., Miller, R., Morcrette, J.-J., Myhre, G., Penner, J., Perlwitz, J., Stier, P., Takemura, T., and Zender, C. S.: Global dust model intercomparison in AeroCom phase I, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 7781-7816, doi:10.5194/acp-11-7781-2011, 2011.
- Jickells, T.D., et al.: Global Iron Connections Between Desert Dust, Ocean Biogeochemistry, and Climate. *Science* 308, 67-71, doi: 10.1126/science.1105959, 2005.
- Kalnay et al., The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 77, 437-470, , [https://doi.org/10.1175/1520-0477\(1996\)077<0437:TNYRP>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0477(1996)077<0437:TNYRP>2.0.CO;2), 1996.
- Kandler, K., Lieke, K., Benker, N., Emmel, C., Küpper, M., MüllerEbert, D., Ebert, M., Scheuven, D., Schladitz, A., Schütz, L., and Weinbruch, S.: Electron microscopy of particles collected at Praia, Cape Verde, during the Saharan Mineral dust experiment: particle chemistry, shape, mixing state and complex refractive index, *Tellus B*, 63, 475–496, 2011.

- Kandler, K., Schneiders, K., Ebert, M., Hartmann, M., Weinbruch, S., Prass, M., and Pöhlker, C.: Composition and mixing state of atmospheric aerosols determined by electron microscopy: method development and application to aged Saharan dust deposition in the Caribbean boundary layer, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 13429–13455, <https://doi.org/10.5194/acp-18-13429-2018>, 2018.
- Karydis, V. & Tsimpidi, Alexandra & Bacer, Sara & Pozzer, Andrea & Nenes, Athanasios & Lelieveld, Jos. Global impact of mineral dust on cloud droplet number concentration. *Atmospheric Chemistry and Physics*. 17. 5601-5621. 10.5194/acp-17-5601-2017, 2017.
- Kaufman, Y. J., I. Koren, L. A. Remer, D. Tanré, P. Ginoux, and S. Fan: Dust transport and deposition observed from the Terra-Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) spacecraft over the Atlantic Ocean, *J. Geophys. Res.*, 110, D10S12, doi:10.1029/2003JD004436, 2005.
- Kemppinen, O., Nousiainen, T., Merikallio, S., and Räisänen, P.: Retrieving microphysical properties of dust-like particles using ellipsoids: the case of refractive index, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 11117–11132, <https://doi.org/10.5194/acp-15-11117-2015>, 2015.
- Kim, D., Chin, M., Yu, H., Eck, T.F., Sinyuk, A., Smirnov, A., Holben, B.N.: Dust optical properties over North Africa and Arabian Peninsula derived from the AERONET dataset. *Atmos. Chem. Phys.* 11, 10733–10741. <http://dx.doi.org/10.5194/acp-11-10733-2011>, 2011.
- Kitto, M. E., and D. L. Anderson, The use of Whatman-41 filters for particle collection, *Atmospheric Environment*, 22(11), 2629-2630, 1988.
- Knippertz, P., Stuut, J.-B.W. Chapter 1 Introduction. In: Knippertz, P., Stuut, J.-B.W. (Eds.), *Mineral Dust: A Key Player in the Earth System*. Springer, New York, pp. 1–14. <http://dx.doi.org/10.1007/978-94-017-8978-3>, 2014.
- Kristensen, T. B., Müller, T., Kandler, K., Benker, N., Hartmann, M., Prospero, J. M., Wiedensohler, A., and Stratmann, F.: Properties of cloud condensation nuclei (CCN) in the trade wind marine boundary layer of the western North Atlantic, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 2675–2688, <https://doi.org/10.5194/acp-16-2675-2016>, 2016.
- Leon, J. F., Derimian, Y., Chiapello, I., Tanre, D., Podvin, T., Chatenet, B., Diallo, A., and Deroo, C.: Aerosol vertical distribution and optical properties over M'Bour (16.96 degrees W; 14.39 degrees N), Senegal from 2006 to 2008, *Atmos Chem Phys*, 9, 9249-9261, 10.5194/acp-9-9249-2009, 2009.
- Levy, R.C., Remer, L.A., Kleidman, R.G., Mattoo, S., Ichoku, C., Kahn, R., Eck, T.F., 2010. Global evaluation of the Collection 5 MODIS dark-target aerosol products over land. *Atmos. Chem. Phys.* 10(21), 10399-10420.

- Li, Z., Li, K., Li, L., Xu, H., Xie, Y., Ma, Y., Li, D., Goloub, P., Yuan, Y., and Zheng, X.: Calibration of the degree of linear polarization measurements of the polarized Sun-sky radiometer based on the POLBOX system, *Appl. Opt.*, 57, 1011–1018, <https://doi.org/10.1364/AO.57.001011>, 2018.
- Liao, H. and Seinfeld, J. H.: Radiative forcing by mineral dust aerosols: Sensitivity to key variables, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 103, 31637–31645, <https://doi.org/10.1029/1998JD200036>, 1998.
- Lohmann, U., Rotstajn, L., Storelvmo, T., Jones, A., Menon, S., Quaas, J., Ekman, A.M.L., Koch, D., Ruedy, R., 2010. Total aerosol effect: radiative forcing or radiative flux perturbation? *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 3235–3246, doi: 10.5194/acp-10-3235-2010.
- Mallet, M., Dubovik, O., Nabat, P., Dulac, F., Kahn, R., Sciare, J., Paronis, D., and Léon, J. F.: Absorption properties of Mediterranean aerosols obtained from multi-year ground-based remote sensing observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 9195–9210, <https://doi.org/10.5194/acp-13-9195-2013>, 2013.
- Maring, H., D. L. Savoie, M. A. Izaguirre, L. Custals, and J. S. Reid: Mineral dust aerosol size distribution change during atmospheric transport, *J. Geophys. Res.*, 108(D19), 8592, doi:10.1029/2002JD002536, 2003.
- Martet, M., Peuch, V.H., Laurent, B., and Marticorena, B.: Evaluation of long-range transport and deposition of desert dust with the CTM MOCAGE, *Tellus 61B*, 446-463. DOI: 10.1111/j.1600-0889.2008.00413.x, 2009.
- Mateos, D., Antón, M., Toledano, C., Cachorro, V. E., AladosArboledas, L., Sorribas, M., Costa, M. J., and Baldasano, J. M.: Aerosol radiative effects in the ultraviolet, visible, and nearinfrared spectral ranges using long-term aerosol data series over the Iberian Peninsula, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 13497–13514, <https://doi.org/10.5194/acp-14-13497-2014>, 2014.
- Mateos, D., Cachorro, V. E., Toledano, C., Burgos, M. A., Bennouna, Y., Torres, B., Fuertes, D., González, R., Guirado, C., Calle, A., de Frutos, A.M., 2015. Columnar and surface aerosol load over the Iberian Peninsula establishing annual cycles, trends, and relationships in five geographical sectors, *Sci. Total Environ.*, 518–519, 378–392, doi:10.1016/j.scitotenv.2015.03.002.
- Mateos, D., Cachorro, V., Velasco-Merino C., O'Neill, N.T., Burgos, M. A., Gonzalez, R., Toledano, C., Herreras, M., Calle, A., de Frutos, A. M.: Comparison of three different methodologies for the identification of high atmospheric turbidity episodes, *Atmospheric Research.*, 237, 104835. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2019.104835>, 2020.

- Meloni, D., di Sarra, A., Pace, G., Monteleone, F.: Optical properties of aerosols over the central Mediterranean. 2. Determination of single scattering albedo at two wavelengths for different aerosol types. *Atmos. Chem. Phys.* 6, 715-727, 2006.
- MITECO 2019; <https://www.miteco.gob.es/es/calidad-y-evaluacion-ambiental/temas/atmosfera-y-calidad-del-aire/calidad-del-aire/evaluacion-datos/fuentes-naturales/anuales.aspx>.
- Morton P. L., Landing W. M., Hsu S-C, Milne A., Aguilar-Islas A. M., Baker A. R., Bowie A. R., Buck C. S., Gao Y., Gichuki S., Hastings M. G., Hattta M., Johansen A. M., Losno R., Mead C., Patey M. D., Swarr G., Vandermark A., and Zamora L. M., Methods for the sampling and analysis of marine aerosols: Results from the 2008 GEOTRACES aerosol intercalibration experiment, *Limnology and Oceanography: Methods*, 11(FEB), 62-78.10.4319/lom.2013.11.62, 2013.
- Müller, D., Ansmann, A., Freudenthaler, V., Kandler, K., Toledano, C., Hiebsch, A., Gasteiger, J., Esselborn, M., Tesche, M., Heese, B., Althausen, D., Weinzierl, B., Petzold, A., and von Hoyningen-Huene, W.: Mineral dust observed with AERONET Sun photometer, Raman lidar, and in situ instruments during SAMUM 2006: Shapedependent particle properties, *J. Geophys. Res.*, 115, D11207, <https://doi.org/10.1029/2009JD012523>, 2010a.
- Müller, D., Lee, K.-H., Gasteiger, J., Tesche, M., Weinzierl, B., Kandler, K., Müller, T., Toledano, C., Otto, S., Althausen, D., and Ansmann, A.: Comparison of Optical and Microphysical Properties of Pure Saharan Mineral Dust Observed With AERONET Sun Photometer, Raman Lidar, and In-Situ Instruments During SAMUM 2006, *J. Geophys. Res.*, 117, D07211, <https://doi.org/10.1029/2011JD016825>, 2012.
- Müller, D., Weinzierl, B., Petzold, A., Kandler, K., Ansmann, A., Müller, T., Tesche, M., Freudenthaler, V., Esselborn, M., Heese, B., Althausen, D., Schladitz, A., Otto, S., and Knippertz, P.: Mineral dust observed with AERONET Sun photometer, Raman lidar, and in situ instruments during SAMUM 2006: Shapeindependent particle properties, *J. Geophys. Res.*, 115, D07202, <https://doi.org/10.1029/2009JD012520>, 2010b.
- Müller, T., Schladitz, A., and Wiedensohler, A.: Spectral particle absorption coefficients, single scattering albedos, and imaginary parts of refractive indices from ground based in-situ measurements at Cape Verde Island during SAMUM-2, *Tellus B*, 63, 573–588, <https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2011.00572.x>, 2011.
- Myhre, G., D. Shindell, F.-M. Bréon, W. Collins, J. Fuglestedt, J. Huang, D. Koch, J.-F. Lamarque, D. Lee, B. Mendoza, T. Nakajima, A. Robock, G. Stephens, T. Takemura and H. Zhang, 2013: 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* [Stocker, T.F.,

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

Nakajima, T., M. Tanaka, and T. Yamauchi, Retrieval of the optical properties of aerosols from aureole and extinction data, *Appl. Opt.*, 22, 2951-2959, 1983.

NASA Goddard Space Flight Center: AEROSOL ROBOTIC NETWORK (AERONET), available at: <https://aeronet.gsfc.nasa.gov/>, last access: 28 November 2019.

O'Neill, N.T., Dubovik, O., and Eck, T.F., Modified Ångström exponent for the characterization of submicrometer aerosols, *Appl. Opt.* 40, 2368-2375, 2001.

O'Neill, N.T., Eck, T.F., Smirnov, A., Holben B.N., Thulasiraman, S. Spectral discrimination of coarse and fine mode optical depth, *J. Geophys. Res.*, 108(D17), 4559, doi:10.1029/2002JD002975, 2003.

O'Neill, N. T.: Comment on "Classification of aerosol properties derived from AERONET direct sun data" by Gobbi et al. (2007), *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 10017-10019, doi:10.5194/acp-10-10017-2010, 2010.

Pappalardo, G., Amodeo, A., Apituley, A., Comeron, A., Freudenthaler, V., Linné, H., Ansmann, A., Bösenberg, J., D'Amico, G., Mattis, I., Mona, L., Wandinger, U., Amiridis, V., Alados-Arboledas, L., Nicolae, D., and Wiegner, M.: EARLINET: towards an advanced sustainable European aerosol lidar network, *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 2389–2409, <https://doi.org/10.5194/amt-7-2389-2014>, 2014.

Pérez, L., Tobías, A., Querol, X., Pey, J., Alastuey, A., Díaz, J., and Sunyer, J.: Saharan dust, particulate matter and cause-specific mortality: A case-crossover study in Barcelona (Spain), *Environ. Int.*, 48, 150–155, doi:10.1016/j.envint.2012.07.001, 2012.

Pérez, N., Querol, X., Alastuey, A., Olivares, I., Hervas, M., Cornide, M.J, Javato, R., Salvador, P., Artiñano, B., de la Rosa, J., 2018. Episodios naturales de partículas 2017. "CSIC, CIEMAT, Ministerio de Agricultura y Pesca, Alimentación y Medio Ambiente, Subdirección General de Calidad del Aire y Medio Ambiente Industrial". April 2018. See this report at web-page: <https://www.miteco.gob.es/es/calidad-y-evaluacion-ambiental/temas/atmosfera-y-calidad-del-aire/calidad-del-aire/evaluacion-datos/fuentes-naturales/anuales.aspx>.

Pey, J., Querol, X., Alastuey, A., Forastiere, F., Stafoggia, M. African dust outbreaks over the Mediterranean Basin during 2001-2011: PM10 concentrations, phenomenology and trends, and its relation with synoptic and mesoscale meteorology. *Atmos. Chem. Phys.* 13(3), 1395-1410, doi:10.5194/acp-13-1395-2013, 2013.

- Pope, C. A.: Review: Epidemiological basis for particulate air pollution health standards, *Aerosol Sci. Tech.*, 31, 4–14, doi:10.1080/027868200303885, 2000.
- Prats, N. Utilización del fotómetro Cimel (AERONET) para el análisis de parámetros microfísicos y radiativos del aerosol atmosférico en el suroeste de la Península Ibérica, Tesis Doctoral, Universidad de Valladolid, 2009.
- Prats, N., Cachorro, V. E., Berjón, A., Toledano, C., and De Frutos, A. M.: Column-integrated aerosol microphysical properties from AERONET Sun photometer over southwestern Spain, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 12535–12547, <https://doi.org/10.5194/acp-11-12535-2011>, 2011.
- Prats, N., Cachorro, V. E., Berjón, A., Toledano, C., and De Frutos, A. M.: Column-integrated aerosol microphysical properties from AERONET Sun photometer over southwestern Spain, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 12535-12547, doi:10.5194/acp-11-12535-2011, 2011. Prospero, J.M., Glaccum, R.A., and Nees, R.T.: Atmospheric transport of soil dust from Africa to South America, *Nature* 289 (5798), 570-572, 1981.
- Prospero, J. M. and Carlson, T. N.: Vertical and areal distribution of Saharan dust over the western equatorial north Atlantic Ocean, *J. Geophys. Res.*, 77, 5255–5265, <https://doi.org/10.1029/JC077i027p05255>, 1972.
- Prospero, J. M., and O. L. Mayol-Bracero. "Understanding the transport and impact of African dust on the Caribbean Basin." *Bulletin of the American Meteorological Society* 94 (9):1329-1337. doi: 10.1175/BAMS-D-12-00142.1, 2013.
- Prospero, J. M., Collard, F.-X., Molinié, J., and Jeannot, A.: Characterizing the annual cycle of African dust transport to the Caribbean Basin and South America and its impact on the environment and air quality, *Global Biogeochem. Cy.*, 28, 757–773, <https://doi.org/10.1002/2013GB004802>, 2014.
- Prospero, J. M.: Long-term measurements of the transport of African mineral dust to the southeastern United States: Implications for regional air quality, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 104(D13), 15917–15927, 1999.
- Prospero, J.: Long range transport of mineral dust in the global atmosphere: impact of African dust on the environment of the south-eastern United States., *P. Natl. Acad. Sci. USA*, 96, 3396– 3403, 1999.
- Prospero, J.M., Blades, E., Mathison, G., and Naidu, R.: Interhemispheric transport of viable fungi and bacteria from Africa to the Caribbean with soil dust, *Aerobiologia* 21, 1-19, DOI 10.1007/s10453-004-5872-7, 2005

- Prospero, J.M., Glaccum, R.A., and Nees, R.T., 1981. Atmospheric transport of soil dust from Africa to South America, *Nature* 289 (5798), 570-572.
- Prospero, Joseph M., and Peter J. Lamb. 2003. "African Droughts and Dust Transport to the Caribbean: Climate Change Implications." *Science* 302 (5647):1024-1027. doi: 10.1126/science.1089915.
- Pszenny, A., C. Fischer, A. Mendez, and M. Zetwo, Direct comparison of cellulose and quartz fiber filters for sampling submicrometer aerosols in the marine boundary layer, *Atmospheric Environment Part A General Topics*, 27 A(2), 281-284, 1993.
- Querol, X., Pey, J., Pandolfi, M., Alastuey, A., Cusack, M., Pérez, N., Moreno, T., Kleanthous, S., 2009. African dust contributions to mean ambient PM₁₀ mass-levels across the Mediterranean Basin. *Atmos. Environ.* 43(28), 4266-4277, doi: 10.1016/j.atmosenv.2009.06.013.
- Quinn, P.K., Shaw, G., Andrews, E., Dutton, E.G., Ruoho-Airola, T., Gong, S.L., 2007. Arctic haze: current trends and knowledge gaps. *Tellus* 59B, 99e114.
- Reid, J. S., et al., Analysis of measurements of Saharan dust by airborne and ground-based remote sensing methods during the Puerto Rico Dust Experiment (PRIDE), *J. Geophys. Res.*, 108(D19), 8586, doi:10.1029/2002JD002493, 2003.
- Reid, J. S., Kinney, J. E., Westphal, D. L., Holben, B. N., Welton, E. J., Tsay, S., Eleuterio, D. P., Campbell, J. R., Christopher, S. A., Colarco, P. R., Jonsson, H. H., Livingston, J. M., Maring, H. B., Meier, M. L., Pilewskie, P., Prospero, J. M., Reid, E. A., Remer, L. A., Russel, P. B., Savoie, D. L., Smirnov, A., and Tanre, D.: Analysis of measurements of Saharan dust by airborne and ground-based remote sensing methods during the Puerto Rico Dust Experiment (PRIDE), *J. Geophys. Res.*, 108, 8586, <https://doi.org/10.1029/2002JD002493>, 2003.
- Rodríguez, E., Toledano, C., Cachorro, V. E., Ortiz, P., Stebel, K., Berjón, A., Blindheim, S., Gausa, M. de Frutos, A. M. 2012. Aerosol characterization at the sub-Arctic site Andenes (69°N, 16°E), by the analysis of columnar optical properties. *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, 138: 471–482. doi: 10.1002/qj.921.
- Rodríguez, S., Cuevas, E., Prospero, J. M., Alastuey, A., Querol, X., López-Solano, J., García, M. I., and Alonso-Pérez, S.: Modulation of Saharan dust export by the North African dipole, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 7471-7486, <https://doi.org/10.5194/acp-15-7471-2015>, 2015.
- Román, R. Reconstrucción y análisis de la radiación ultravioleta eritemática en la Península Ibérica desde 1950, Tesis Doctoral, Universidad de Valladolid, 2014.

- Ryder, C. L., McQuaid, J. B., Flamant, C., Rosenberg, P. D., Washington, R., Brindley, H. E., Highwood, E. J., Marsham, J. H., Parker, D. J., Todd, M. C., Banks, J. R., Brooke, J. K., Engelstaedter, S., Estelles, V., Formenti, P., Garcia-Carreras, L., Kocha, C., Marenco, F., Sodemann, H., Allen, C. J. T., Bourdon, A., Bart, M., Cavazos-Guerra, C., Chevaillier, S., Crosier, J., Darbyshire, E., Dean, A. R., Dorsey, J. R., Kent, J., O'Sullivan, D., Schepanski, K., Szpek, K., Trembath, J., and Woolley, A.: Advances in understanding mineral dust and boundary layer processes over the Sahara from Fennec aircraft observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 8479–8520, <https://doi.org/10.5194/acp-15-8479-2015>, 2015.
- Salinas, S.V., Chew, B.N., Miettinen, J., Campbell, J.R., Welton, E.J., Reid, J.S., Yu, L.E., Liew, S.C., 2013. Physical and optical characteristics of the October 2010 haze event over Singapore: A photometric and lidar analysis. *Atmospheric Research* 122, 555-570, doi:10.1016/j.atmosres.2012.05.021.
- Savoie, D. L., J. M. Prospero, and E. S. Saltzman, Non-sea-salt sulfate and nitrate in trade wind aerosols at Barbados: evidence for long-range transport, *J. Geophys. Res.*, 94(D4), 5069-5080, 1989.
- Savoie, Dennis L., Richard Arimoto, William C. Keene, Joseph M. Prospero, Robert A. Duce, and James N. Galloway. "Marine biogenic and anthropogenic contributions to non-sea-salt sulfate in the marine boundary layer over the North Atlantic Ocean." *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 107 (D18):4356. doi: 10.1029/2001JD000970, 2002.
- Schladitz, A., Müller, T., Nowak, A., Kandler, K., Lieke, K., Massling, A., and Wiedensohler, A.: In-situ aerosol characterization at Cape Verde. Part 1: Particle number size distributions, hygroscopic growth and state of mixing of the marine and Saharan dust aerosol, *Tellus B*, 63, 531–548, <https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2011.00569.x>, 2011.
- Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N.. *Atmospheric Chemistry and Physics from air pollution to climate change*. New York. John Wiley and Sons, Incorporated, 1998.
- Shifrin, K.S., 1995. Simple relationships for the Ångström parameter of disperse systems. *Appl. Opt.* 34, 4480-4485.
- Sinyuk, A., Holben, B. N., Eck, T. F., Giles, D. M., Slutsker, I., Korokin, S., Schafer, J. S., Smirnov, A., Sorokin, M., and Lyapustin, A.: The AERONET Version 3 aerosol retrieval algorithm, associated uncertainties and comparisons to Version 2, *Atmos. Meas. Tech.*, 13, 3375–3411, <https://doi.org/10.5194/amt-13-3375-2020>, 2020.
- Smirnov, A., B. N. Holben, D. Savoie, J. M. Prospero, Y. J. Kaufman, D. Tanre, T. F. Eck, and I. Slutsker. "Relationship between column aerosol optical thickness and in situ

- ground based dust concentrations over Barbados." *Geophysical Research Letters* 27 (11):1643-1646, 2000.
- Smirnov, A., B.N.Holben, Y.J. Kaufman, O. Dubovik, T.F. Eck, I. Slutsker, C. Pietras, and R. Halthore. *Optical Properties of Atmospheric Aerosol in Maritime Environments, J. Atm. Sci.*, 59, 501-523, 2002.
- Smirnov, A., Holben, B. N., Eck, T. F., Dubovik, O., and Slutsker, I.: Cloud-Screening and Quality Control Algorithms for the AERONET Database, *Remote Sens. Environ.*, 73, 337–349, 2000a.
- Smirnov, A., Holben, B. N., Savoie, D., Prospero, J. M., Kaufman, Y. J., Tanre, D., Eck, T. F., and Slutsker, I.: Relationship between column aerosol optical thickness and in situ ground based dust concentrations over Barbados, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 1643–1646, <https://doi.org/10.1029/1999GL011336>, 2000b.
- Smirnov, A., Holben, B., Kaufman, Y., Dubovik, O., Eck, T., Slutsker, I., Pietras, C., and Halthore, R.: *Optical Properties of Atmospheric Aerosol in Maritime Environments, J. Atmos. Sci.*, 59, 501–523, 2002.
- Stein, A.F., Draxler, R.R, Rolph, G.D., Stunder, B.J.B., Cohen, M.D., and Ngan, F.: NOAA's HYSPLIT atmospheric transport and dispersion modeling system, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 96, 2059-2077, 2015.
- Tang, M., Cziczo, D. J., and Grassian, V. H.: Interactions of Water with Mineral Dust Aerosol: Water Adsorption, Hygroscopicity, Cloud Condensation, and Ice Nucleation, *Chem. Rev.*, 116, 4205–4259, <https://doi.org/10.1021/acs.chemrev.5b00529>, 2016.
- Tegen, I.: Modeling the mineral dust aerosol cycle in the climate system, *Quaternary Sci. Rev.*, 22, 1821–1834, [https://doi.org/10.1016/S0277-3791\(03\)00163-X](https://doi.org/10.1016/S0277-3791(03)00163-X), 2003.
- Taylor, S. R., and S. M. McLennan, *The continental crust: Its composition and evolution*: Oxford, 1985.
- Tegen, I., Schepanski, K., and Heinold, B.: Comparing two years of Saharan dust source activation obtained by regional modelling and satellite observations, *Atmos Chem Phys*, 13, 2381-2390, 10.5194/acp-13-2381-2013, 2013.
- Tesche, M., Gross, S., Ansmann, A., Müller, D., Althausen, D., Freudenthaler, V., and Esselborn, M.: Profiling of Saharan dust and biomass-burning smoke with multiwavelength polarization Raman lidar at Cape Verde, *Tellus B*, 63, 649–676, <https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2011.00548.x>, 2011.

- Toledano, C. Climatología de los aerosoles mediante la caracterización de las propiedades ópticas y masas de aire en la estación “El Arenisillo” de la red AERONET, Tesis Doctoral, Universidad de Valladolid, 2005.
- Toledano, C., Cachorro, V. E., de Frutos, A. M., Sorribas, M., Prats, N. Inventory of African Desert Dust Events Over the Southwestern Iberian Peninsula in 2000–2005 with an AERONET Cimel Sun Photometer, *J. Geophys. Res.*, 112, D21201, doi:10.1029/2006JD008307, 2007.
- Toledano, C., Cachorro, V.E., de Frutos, A.M., Torres, B., Berjón, A., Sorribas, M., Stone, R.S. Airmass Classification and Analysis of Aerosol Types at El Arenisillo (Spain). *J. Appl. Meteorol. Clim.* 48, 962-981, 2009.
- Toledano, C., González, R., Fuertes, D., Cuevas, E., Eck, T. F., Kazadzis, S., Kouremeti, N., Gröbner, J., Goloub, P., Blarel, L., Román, R., Barreto, Á., Berjón, A., Holben, B. N., and Cachorro, V. E.: Assessment of Sun photometer Langley calibration at the high-elevation sites Mauna Loa and Izaña, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 14555–14567, <https://doi.org/10.5194/acp-18-14555-2018>, 2018.
- Toledano, C., Wiegner, M., Garhammer, M., Seefeldner, M., Gasteiger, J., Müller, D., and Koepke, P.: Spectral aerosol optical depth characterization of desert dust during SAMUM 2006, *Tellus B*, 61, 216–228, 2009.
- Toledano, C., Wiegner, M., Gross, S., Freudenthaler, V., Gasteiger, J., Müller, D., Müller, T., Schladitz, A., Weinzierl, B., Torres, B., and O’Neill, N. T.: Optical properties of aerosol mixtures derived from sun-sky radiometry during SAMUM-2, *Tellus B*, 63, 635– 648, <https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2011.00573.x>, 2011.
- Torres, B., Dubovik, O., Fuertes, D., Schuster, G., Cachorro, V. E., Lapyonok, T., Goloub, P., Blarel, L., Barreto, A., Mallet, M., Toledano, C., and Tanré, D.: Advanced characterisation of aerosol size properties from measurements of spectral optical depth using the GRASP algorithm, *Atmos. Meas. Tech.*, 10, 3743–3781, <https://doi.org/10.5194/amt-10-3743-2017>, 2017.
- Trapp, J. M., F. J. Millero, and J. M. Prospero, Temporal variability of the elemental composition of African dust measured in trade wind aerosols at Barbados and Miami, *Marine Chemistry*, 120(1-4), 71-82, 2010.
- Valenzuela, A., Olmo, F. J., Lyamani, H., Antón, M., Quirantes, A., and Alados-Arboledas, L. Classification of aerosol radiative properties during African desert dust intrusions over southeastern Spain by sector origins and cluster analysis, *J. Geophys. Res.*, 117, D06214, doi:10.1029/2011JD016885, 2012.
- Valle-Díaz, C.J., E. Torres-Delgado, S.M. Colón-Santos, T. Lee, J.L. Collett Jr., W.H. McDowell, and O.L. Mayol-Bracero: Impact of long-range transported African dust on

- cloud water chemistry at a tropical montane cloud forest in northeastern Puerto Rico. *Aerosol and Air Quality Research* 16: 653–664, DOI: 10.4209/aaqr.2015.05.0320, 2016.
- Velasco-Merino, C., Mateos, D., Toledano, C., Prospero, J. M., Molinie, J., Euphrasie-Clotilde, L., González, R., Cachorro, V. E., Calle, A., and de Frutos, A. M.: Impact of long-range transport over the Atlantic Ocean on Saharan dust optical and microphysical properties based on AERONET data, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 9411-9424, <https://doi.org/10.5194/acp-18-9411-2018>, 2018.
- Vergaz, R. *Propiedades ópticas de los aerosoles atmosféricos. Caracterización del área del Golfo de Cádiz*. Tesis doctoral, Universidad de Valladolid, Septiembre de 2001.
- Vergaz, R., Cachorro, V.E., de Frutos, A.M. A quantitative comparison of alpha ångström turbidity parameter retrieved in different spectral ranges based on spectroradiometer solar radiation measurements. *Atmos. Environ.* 35, 5117-5124, 2001.
- Viana, M., Salvador, P., Artiñano, B., Querol, X., Alastuey, A., Pey, J., Latz, A.J., Cabañas, M., Moreno, T., García, S., Herce, M., Diez, P., Romero, D., Fernández, R., 2010. Assessing the performance of methods to detect and quantify African dust in airborne particulates, *Environ. Sci, Technol.*, 44, 8814-8820, doi: 10.1021/es1022625.
- Weinzierl, B., A. Ansmann, J. Prospero, D. Althausen, N. Benker, F. Chouza, M. Dollner, D. Farrell, W. Fomba, V. Freudenthaler, J. Gasteiger, S. Groß, M. Haarig, B. Heinold, K. Kandler, T. Kristensen, O. Mayol-Bracero, T. Müller, O. Reitebuch, D. Sauer, A. Schäfler, K. Schepanski, A. Spanu, I. Tegen, C. Toledano, and A. Walser, 2016: The Saharan Aerosol Long-range Transport and Aerosol-Cloud Interaction Experiment (SALTRACE): overview and selected highlights. *Bull. Amer. Meteor. Soc.* doi:10.1175/BAMS-D-15-00142.1, in press.
- Weinzierl, B., Ansmann, A., Prospero, J. M., Althausen, D., Benker, N., Chouza, F., Dollner, M., Farrell, D., Fomba, W. K., Freudenthaler, V., Gasteiger, J., Groß, S. G., Haarig, M., Heinold, B., Kandler, K., Kristensen, T. B., Mayol-Bracero, O. L., Müller, T., Reitebuch, O., Sauer, D., Schäfler, A., Schepanski, K., Spanu, A., Tegen, I., Toledano, C., and Walser, A.: The Saharan Aerosol Long-range Transport and Aerosol-Cloud Interaction Experiment (SALTRACE): overview and selected highlights, *B. Am. Meteorol. Soc.*, 98, 1427–1451, <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-15-00142.1>, 2017.
- Wiegner, M., Groß, S., Freudenthaler, V., Schnell, F., and Gasteiger, J.: The May/June 2008 Saharan dust event over Munich: Intensive aerosol parameters from lidar measurements, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 116, D23213, <https://doi.org/10.1029/2011JD016619>, 2011.

- Willeke, K., and Baron, P.A., Editors. *Aerosol Measurement. Principles. Techniques and Applications*. John Wiley & Sons, 1993.
- Yu, H., M. Chin, H. Bian, T. Yuan, J. M. Prospero, A. H. Omar, L. A. Remer, D. M. Winker, Y. Yang, Y. Zhang, and Z. Zhang. 2014. "Quantification of trans-Atlantic dust transport from seven-year (2007-2013) record of CALIPSO lidar measurements." *Remote Sensing of Environment* 159:232-249. doi: 10.1016/j.rse.2014.12.010.
- Yu, Hongbin, Mian Chin, Tianle Yuan, Huisheng Bian, Lorraine A. Remer, Joseph M. Prospero, Ali Omar, David Winker, Yuekui Yang, Yan Zhang, Zhibo Zhang, and Chun Zhao. 2015. "The fertilizing role of African dust in the Amazon rainforest: A first multiyear assessment based on data from Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations." *Geophysical Research Letters*:2015GL063040. doi: 10.1002/2015GL063040.
- Zamora, L. M., J. M. Prospero, D. A. Hansell, and J. M. Trapp. 2013. "Atmospheric P deposition to the subtropical North Atlantic: sources, properties, and relationship to N deposition." *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 118 (3):1546-1562. doi: 10.1002/jgrd.50187.