AEROSOL INDIRECT RADIATIVE FORCING IN MARINE WATER CLOUDS OVER THE OCEAN ADJACENT TO INDIAN SUBCONTINENT

SOFIYA RAO

CENTRE FOR ATMOSPHERIC SCIENCES
INDIAN INSTITUTE OF TECHNOLOGY DELHI
AUGUST 2022

Aerosol Indirect radiative forcing in marine water clouds over the ocean adjacent to Indian subcontinent

by

Sofiya Rao

Centre for Atmospheric Sciences

Submitted

In fulfilment of the requirements of the degree of **DOCTOR OF PHILOSOPHY**

to the

Indian Institute of Technology Delhi

August 2022

Certificate

This is to certify that the thesis entitled "**Aerosol Indirect radiative forcing in marine water clouds over the Ocean adjacent to Indian subcontinent**" being submitted by Ms. **Sofiya Rao** for the award of the degree of **Doctor of Philosophy**, is a record of the original bonafide research work carried out by her. She has worked under my guidance and supervision and has fulfilled the requirements for the submission of this thesis. The results presented in this thesis have not been submitted in part or full to any University or Institution for award of any degree/diploma.

Dr. Sagnik Dey

Professor
Centre for Atmospheric Sciences,
Indian Institute of Technology Delhi,
Hauz Khas, New Delhi-110016, India

Acknowledgments

Completing any work that we take up in life is always a team effort. First and foremost, I would like to express my sincere gratitude towards my supervisor, Prof. Sagnik Dey, for his valuable guidance, patience, enthusiasm, constant encouragement, and immense knowledge. He is the epitome of goodness and dedication for me. He helped me develop into a competent researcher and a confident human. His calmness inspired me through my most challenging times. I could not have imagined having a better supervisor and mentor for my Ph.D. He is the person I credit for making my Ph.D. tenure 'happy.' He has always provided me insightful suggestions and support in developing independent thinking and research skills.

I want to thank Prof. Somnath Baidya Roy and Prof. Manju Mohan for generously sharing their knowledge and time. I want to thank the HOC, my SRC chairperson, CRC chairperson, and all the faculties at Centre for Atmospheric Sciences, IIT Delhi, for providing all the necessary facilities and a great environment to learn and grow. They are always available for discussion, suggestions, and other academic and non-academic help during various stages of my Ph.D. tenure. I thank Dr. Atul Kumar Shrivastava, Scientist E, IITM New Delhi, for his valuable suggestions during the semester progress presentations and pre Ph.D. presentation.

I want to acknowledge computing and storage facilities at CAS, IIT Delhi for hassle-free computation and analysis during my Ph.D.

I want to thank my friends from IIT Delhi, Dr. Shilpa Gahlot, Dr. Upma Singh, Dr. Thumree Sarkar, Sudipta, Soumi, Amani, for always being the friends in need and their excellent company made my stay at IIT pleasant and memorable. I also thank all my friends, like Dr. Palak Baliyan, and Dr. Pallavi, Popat, Puneet for being there for me throughout. I like to thank my seniors, Dr. Sourangsu Chowdhury, Dr. Parul Srivastava, Dr. Abhishek Kumar Upadhyay, Dr. Pushp Raj Tiwari, Dr. Sushant Das, and Dr. Gavendra Pandey, for their constant support and suggestions. I also thank Vijay for helping me with the logistics.

Words cannot completely express gratitude and love to my family members (my parents, brothers, and in-laws) who have encouraged me through this journey. My mother and father are my first teachers, they taught me to dream big, understand the virtues of life, be good, help, and be patient in all situations. I dedicate my thesis to my Mumma and Papa. Special thanks to my husband Anshul Yadav for his constant support, and my three years old little angel Prisha Rao for her beautiful smile.

Finally, I thank the almighty God for the passion, strength, perseverance, and resources to complete this study.

Date: 22nd Aug 2022 Sofiya Rao

Abstract

Aerosol-cloud interaction continues to be one of the most uncertain components of climate change. This uncertainty is even more prominent at the regional level because of the heterogeneity in aerosol and cloud properties (IPCC, 2013), especially over the Indian monsoon region due to heterogeneity in aerosol and cloud properties. Ever since the role of aerosols in altering the cloud characteristics was demonstrated during the Indian Ocean Experiment, efforts have increased exponentially to advance understanding aerosol-cloud-precipitation interaction using in-situ observations in stationery and campaign mode, satellite data, and models.

Despite decades of research, climate models still struggle in representing aerosol and cloud characteristics over the South Asian monsoon region. Subsequent observations from the surface, aircraft, and ship campaigns (e.g., BoBMEX, ARMEX, ICARB, ISRO-GBP, CAIPEEX, and CTCZ) provided critical inputs to the modelling community and even to the satellite community to improve the model outputs and satellite products. Better observations led to the robust estimates of aerosol direct radiative forcing at a local and regional scale. However, key gaps exist, particularly in (1) year-round evidence of aerosol-cloud interaction and (2) observationally-constrained estimates of aerosol indirect radiative forcing in the South Asian monsoon region.

This thesis aims to fill these two critical gaps by analyzing fifteen years (Mar 2000-Feb 2015) of daily satellite data over the oceans adjacent to the Indian subcontinent. The focus of the thesis is on marine low water clouds, as different cloud types have contrasting dynamics that might have impacted the interpretation. The results are presented for the three oceanic regions - the Arabian Sea (AS), Bay of Bengal (BoB), and South Indian Ocean (SIO). First, a monthly climatology of cloud and aerosol parameters from various satellite products has been developed to understand the seasonality. Since the satellite products do not provide

characteristics of natural and anthropogenic aerosols separately, a hybrid approach is proposed to first quantify the relative contributions of anthropogenic, dust, and maritime aerosols on total aerosol loading and use the data to understand the sensitivity of cloud characteristics to individual aerosol types. Anthropogenic aerosols contribute 31%, 29%, and 28%, and dust particles contribute 39%, 40%, and 24% to total aerosol optical depth over the AS, BoB, and SIO, with the remaining contributions from maritime aerosols.

Further, the dependency of cloud top pressure on cloud fraction in clean and polluted conditions is analyzed, which provided evidence of lifetime effect. Cloud cover has been found to increase with a decrease in cloud top pressure by a larger margin in the clean conditions than in the polluted condition for anthropogenic aerosols. The relationship is insensitive to marine aerosols. Evidence of semi-direct effect has been identified in three seasons except for the post-monsoon (Oct-Nov) season. In both AS and BOB, the aerosol-cloud interaction is strongly modulated by meteorology compared to the SIO, with a larger impact during the monsoon (Jun-Sep).

Previous studies in the Indian ocean provided evidence of aerosol impacts on cloud properties during the winter (Dec-Feb). This study confirms the presence of aerosol-cloud interaction throughout the year. The effective radius of clouds (*Reff*) has been found to increase with an increase in Liquid Water Path (*LWP)* in clean and polluted conditions suggesting the meteorological impact on the cloud dynamics. However, the segregation of the data into various aerosol bins has allowed isolating the aerosol signal. One critical result is that the aerosol-cloud interaction is the most prominent in the middle range of the liquid water path of 150–350 gm/m^2 in these regions. This study suggested that better and explicit representations of aerosol-cloud interaction in the regional and climate model are required to reduce uncertainty since such interaction is sensitive to the LWP and meteorology.

Next, a theoretical framework has been proposed to analytically estimate aerosol indirect radiative forcing. This framework relies on observationally-constrained estimates of the aerosol-induced changes in cloud albedo (albedo or first indirect effect) and cloud fraction (lifetime or second indirect effect). Cloud albedo (R_c) increases with an increase in *LWP* (macrophysical pathway) and a decrease in R_{eff} (microphysical pathway) due to aerosols. The analysis has been carried out for total aerosols (aerosol optical depth, τa) and anthropogenic aerosols (anthropogenic aerosol optical depth, τan). Look-up tables are generated to quantify the changes in cloud albedo per unit change in aerosol optical depth ($dR_c/d\tau a$) for narrow bins of *LWP* and *Reff* by analyzing the MODIS cloud and aerosol products. In the theoretical construct, the macrophysical and microphysical pathways are separated. R_C response to an increase in τa is found to be the most sensitive in the range of *LWP* between 150-300 gm/m^2 for a range of R_{eff} varying from 8-24 µm.

Using this framework, aerosol first and second indirect radiative forcing is calculated for the three oceanic regions. The mean (±1σ) annual total aerosol indirect radiative forcing over the AS, BoB, and SIO are estimated as -6.7 ± 2.7 W/m^2, -4.3 ± 1.1 W/m^2, -3.6 ± 1.4 W/m^2, respectively. The first aerosol indirect radiative forcing due to the microphysical pathway are estimated to be -3.4 ± 1.7 W/m^2, -4.15 ± 2.04 W/m^2, -4.72 ± 1.5 W/m^2 over the AS, BoB and SIO, respectively. In contrast, mean (±1σ) annual aerosol indirect radiative forcing due to anthropogenic aerosols over the AS, BoB, and SIO are estimated as -5.96 ± 2.4 W/m^2, -4.12 ± 1.7 W/m^2 w/m^2, -8.38 ± .4 W/m^2, respectively, out of which the contributions due to the microphysical pathways are -5.9 ± 3.4 W/m^2, -4.12 ± 2.1 W/m^2, -8.6 ± 5.04 W/m^2 respectively.

The mean (±1σ) annual aerosol indirect effect due to the lifetime effect over the AS, BoB, and SIO are estimated as -3.1± 1.4 W/m^2, -2.5 ± 0.92 W/m^2, and -0.75 ± 0.14 W/m^2 for total aerosols, respectively. In contrast, the annual aerosol indirect radiative forcing due to the lifetime effect over the AS, BoB, and SIO are estimated as -3.7 $\pm$ 1.63 W/m^2, -4.2$\pm$ 3.4 W/m^2, and -0.5 $\pm$ 0.09 W/m^2 for the anthropogenic aerosols.

The results, particularly, the separation of the microphysical and macrophysical pathways in the albedo effect and the comparative assessment relative to the lifetime effect would be critical to modelers who can assess the model performance at a disaggregated level in the aerosol-cloud interaction module. The approach can be applied to estimate aerosol indirect radiative forcing over land and also for other types of clouds in future, and is universally applicable.

सारांश

एरोसोल-क्लाउड इंटरैक्शन जलवायु परिवर्तन के सबसे अनिश्चित घटकों में से एक है। एरोसोल और क्लाउड प्रॉपर्टीज में विविधता के कारण क्षेत्रीय स्तर पर यह अनिश्चितता और भी अधिक प्रमुख है (IPCC,2013), एयरोसोल और क्लाउड प्रॉपर्टीज में विविधता के कारण विशेष रूप से भारतीय मानसून क्षेत्र में यह अधिक है । हिंद महासागर प्रयोग (INDOEX) के दौरान से क्लाउड विशेषताओं को बदलने में एरोसोल की भूमिका का प्रदर्शन किया गया है, और तभी से स्टेशनरी और अभियान मोड, सैटेलाइट डेटा और मॉडल में इन-सीटू अवलोकनों का उपयोग करके, एरोसोल-क्लाउड-प्रेसिपीटशन कि बातचीत को समझने के प्रयासों में तेजी से वृद्धि भी हुई है।

दशकों के शोध के बावजूद, अभी भी दक्षिण एशियाई मानसून क्षेत्र में एरोसोल और क्लाउड विशेषताओं का प्रतिनिधित्व करने में क्लाइमेट मॉडल संघर्ष कर रहे हैं। सतह, विमान और जहाज अभियानों (जैसे, BoBMEX, ARMEX, ICARB, ISRO-GBP, CAIPEEX, और CTCZ) के लगातार अवलोकनों ने मॉडलिंग समुदाय और यहां तक कि उपग्रह समुदाय को मॉडल आउटपुट और सैटेलाइट उत्पादों में सुधार करने के लिए महत्वपूर्ण इनपुट प्रदान किए। बेहतर अवलोकनों ने स्थानीय और क्षेत्रीय स्तर पर एरोसोल प्रत्यक्ष विकिरण बल के मजबूत अनुमानों को जन्म दिया। हालांकि, कुछ मुख्य अंतराल मौजूद हैं इस फील्ड में, विशेष रूप से (1) एरोसोल-क्लाउड इंटरैक्शन के साल भर के साक्ष्य; और (2) दक्षिण एशियाई मानसून क्षेत्र में एरोसोल अप्रत्यक्ष विकिरण बल के अवलोकन-विवश अनुमान।

इस शोध का उद्देश्य इन दो महत्वपूर्ण अंतरालों को भरना है, जिसमे पंद्रह वर्षों (मार्च 2000-फरवरी 2015) का दैनिक सैटेलाइट डेटा का विश्लेषण भारतीय उपमहाद्वीप से सटे महासागरों पर किया गया है। इस शोध का ध्यान सिर्फ नीचले समुद्री पानी वाले बादलों पर है, क्योंकि विभिन्न प्रकार के बादलों में अलग-अलग गतिशीलता होती है, जो व्याख्या को प्रभावित कर सकती है। इस शोध के परिणाम तीन महासागरीय क्षेत्रों - अरब सागर

(AS), बंगाल की खाड़ी (BoB), और दक्षिण हिंद महासागर (SIO) के लिए प्रस्तुत किए गए हैं। सबसे पहले, विभिन्न सैटेलाइट उत्पादों से क्लाउड और एरोसोल मापदंडों का मासिक मौसम विज्ञान विकसित किया गया है। चूंकि सैटेलाइट उत्पाद प्राकृतिक और मानवजनित एरोसोल की विशेषताओं को अलग-अलग प्रदान नहीं करते हैं, इसलिए एक हाइब्रिड एप्रोच का इस्तेमाल किया गया है, जिसमे पहले मानवजनित, धूल, और समुद्री एरोसोल को टोटल एयरोसोल के अनुसार विभाजित किया गया है और इन सभी एयरोसोल प्रकारो का क्लाउड विशेषताओं की संवेदनशीलता को समझा गया हैI टोटल एरोसोल लोडिंग में, एंथ्रोपोजेनिक एरोसोल का योगदान 31%, 29% और 28% है, धूल का योगदान 39%, 40% और 24% AS, BoB और SIO पर है, और शेष योगदान समुद्री एरोसोल का है।

इसके अलावा, आगे इस शोध में *CTP* की निर्भरता f_c पर स्वच्छ और प्रदूषित क्लाउड परिस्थितियों में देखी गयी है और विस्तार से उल्लेख किया गया है, जो की लाइफ टाइम इफ़ेक्ट का प्रमाण प्रदान करता है। अगर मानवजनित एरोसोल की बात किजाये तो प्रदूषित स्थिति की तुलना में स्वच्छ परिस्थितियों में एक बड़े अंतर से CTP में कमी के साथ क्लाउड कवर (f_c) में वृद्धि देखी गई है। जबकि यही रिश्ता समुद्री एरोसोल के प्रति असंवेदनशील है। पोस्ट-मानसून (अक्टूबर-नवंबर) मौसम को छोड़कर तीनो मौसमों में सेमी-डायरेक्ट इफ़ेक्ट के साक्ष्य की पहचान की गई है। AS और BoB दोनों में, एरोसोल-क्लाउड इंटरैक्शन को मौसम विज्ञान द्वारा दृढ़ता से संशोधित किया गया है SIO की तुलना में, जिसमें मानसून (जून-सितंबर) के दौरान एक बड़ा प्रभाव होता है।

हिंद महासागर में पिछले अध्ययनों ने सर्दियों (दिसंबर-फरवरी) के दौरान बादलों के गुणों पर एरोसोल प्रभावों के प्रमाण प्रदान किए। यह अध्ययन पूरे वर्ष एरोसोल-क्लाउड इंटरैक्शन की उपस्थिति की पुष्टि करता है। स्वच्छ और प्रदूषित परिस्थितियों में तरल जल पथ (LWP) में वृद्धि के साथ बादलों की प्रभावी त्रिज्या (R_{eff}) में वृद्धि पाई गई है, जो बादल की गतिशीलता पर मौसम संबंधी प्रभाव का सुझाव देती है। हालांकि, विभिन्न एरोसोल

बिन्स में डेटा के पृथक्करण ने एरोसोल सिग्नल को अलग करने की अनुमति दी गयी है। इस शोध का एक महत्वपूर्ण परिणाम यह है कि एरोसोल-क्लाउड इंटरैक्शन सबसे प्रमुख इन LWP (150-350 gm/m^2) क्षेत्रों में साफ़ तौर पर दिखाई दिया है।

इसके बाद, एरोसोल इंडिरेक्ट रेडिएटिवे फोर्सिंग का विश्लेषणात्मक रूप से अनुमान लगाने के लिए एक सैद्धांतिक ढांचा प्रस्तावित किया गया है। यह ढांचा, अवलोकन-विवश अनुमानों पर निर्भर करता है, जिसमे की एरोसोल-प्रेरित परिवर्तनों से क्लाउड अल्बेडो (अल्बेडो / पहला इंडिरेक्ट इफ़ेक्ट) और क्लाउड फ्रैक्शन (लाइफटाइम या दूसरा इंडिरेक्ट इफ़ेक्ट)। एरोसोल के कारण क्लाउड अल्बेडो (R_c) बढ़ता है *LWP* (मैक्रोफिजिकल पाथवे) में वृद्धि के साथ और R_{eff} (माइक्रोफिजिकल पाथवे) में कमी के साथ। यह विश्लेषण टोटल एरोसोल ऑप्टिकल डेप्थ (τ_a) और मानवजनित एरोसोल ऑप्टिकल डेप्थ (τ_{an}) के लिए किया गया हैंI प्रति यूनिट परिवर्तन R_c का प्रति यूनिट परिवर्तन τ_a ($dRc/d\tau_a$) के साथ सभी रिलेशन्स के लिए लुक-अप टेबल्स तैयार किया गया है, जिसमे MODIS क्लाउड और एरोसोल उत्पादों का विश्लेषण करके *LWP* और R_{eff} के संकीर्ण बिन बनाये गए है। सैद्धांतिक निर्माण में, मैक्रोफिजिकल और माइक्रोफिजिकल रास्ते अलग-अलग हो जाते हैं। R_C की प्रतिक्रिया τ_a की वृद्धि मे सबसे संवेदनशील *LWP* की (150-300 gm/m^2) रेंज में और R_{eff} (8-24 μm) रेंज के लिए पाया गया है।

इस ढांचे का उपयोग करते हुए, तीन महासागरीय क्षेत्रों के लिए एरोसोल पहले और दूसरे इंडिरेक्ट रेडिएटिवे फोर्सिंग की गणना की गयी है। क्रमश, औसत वार्षिक ($\pm 1\sigma$) कुल पहले इंडिरेक्ट रेडिएटिवे फोर्सिंग (माइक्रोफिजिकल + मैक्रोफिजिकल) AS, BoB और SIO पर -6.7 $\pm$ 2.7 W/m^2, -4.3 $\pm$ 1.1 W/m^2, -3.6 $\pm$ 1.4 W/m^2 अनुमानित की गयी हैं। पहला एरोसोल इंडिरेक्ट रेडिएटिवे फोर्सिंग केवल माइक्रोफिजिकल पाथवे के कारण -3.4 $\pm$ 1.7 W/m^2, -4.15 $\pm$ 2.04 W/m^2, -4.72 $\pm$ 1.5 W/m^2 AS, BoB और SIO पर होने का

अनुमान लगाया गया है। इसके विपरीत, औसत वार्षिक (±1σ) AS, BoB और SIO पर मानवजनित एरोसोल के कारण इंडिरेक्ट रेडिएटिवे फोर्सिंग (माइक्रोफिजिकल + मैक्रोफिजिकल) का अनुमान है -5.96 ± 2.4 W/m^2, -4.12 ± 1.7 W/m^2 w/m^2, -8.38 ± .4 W/m^2 क्रमशः, जिनमें से केवल माइक्रोफिजिकल पाथवे के कारण योगदान हैं -5.9 ± 3.4 W/m^2, -4.12 ± 2.1 W/m^2, -8.6 ± 5.04 W/m^2 क्रमश।

अंत में, औसत वार्षिक लाइफटाइम प्रभाव के कारण कुल एरोसोल दूसरे इंडिरेक्ट रेडिएटिवे फोर्सिंग (±1σ) AS, BoB और SIO पर -3.1± 1.4 W/m^2, -2.5±0.92 W/m^2, और -0.75±0.14 W/m^2 का अनुमान है। इसके विपरीत, AS, BoB और SIO पर लाइफटाइम प्रभाव के कारण वार्षिक मानवजनित एरोसोल दूसरे इंडिरेक्ट रेडिएटिवे फोर्सिंग के रूप में अनुमानित हैं -3.7 ±1.63 W/m^2, -4.2±3.4 W/m^2, और -0.5±0.09 W/m^2।

परिणाम, विशेष रूप से, अल्बेडो इफ़ेक्ट में माइक्रोफिजिकल और मैक्रोफिजिकल पाथवे को अलग करना और लाइफटाइम इफ़ेक्ट के सापेक्ष तुलनात्मक मूल्यांकन उन मॉडलर्स के लिए महत्वपूर्ण होगा जो एयरोसोल-क्लाउड इंटरैक्शन मॉड्यूल में एक अलग स्तर पर मॉडल के प्रदर्शन का आकलन कर सकते हैं। भूमि पर और भविष्य में अन्य प्रकार के बादलों के लिए भी एरोसोल इंडिरेक्ट रेडिएटिवे फोर्सिंग का अनुमान लगाने के लिए यह दृष्टिकोण लागू किया जा सकता है, और यह सार्वभौमिक रूप से लागू होता है।

Contents

List of Figures

List of Tables