National Technical University of Athens School of Applied Mathematical and Physical Sciences Physics Department Laboratory of Optoelectronics, Lasers and their Applications Laser Remote Sensing Unit

## Mylonaki G. Maria

Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο Σχολή Εφαρμοσμένων Μαθηματικών και Φυσικών Επιστημών Τομέας Φυσικής Εργαστήριο Οπτοηλεκτρονικής, Laser και Εφαρμογώνν τους

## Μυλωνάκη Γ. Μαρία



# AEROSOL TYPING BASED ON ACTIVE / PASSIVE REMOTE SENSING TECHNIQUE

Ph.D. Thesis

# ΚΑΤΗΓΟΡΙΟΠΟΙΗΣΗ ΑΕΡΟΛΥΜΑΤΩΝ ΜΕ ΧΡΗΣΗ ΕΠΙΓΕΙΑΣ / ΔΟΡΥΦΟΡΙΚΗΣ ΤΗΛΕΠΙΣΚΟΠΗΣΗΣ LIDAR

Διδακτορική Διατριβή

January/Ιανουάριος 2023

# AEROSOL TYPING BASED ON ACTIVE/PASSIVE REMOTE SENSING TECHNIQUE

## **DOCTORAL THESIS**

## MYLONAKI G. MARIA

National Technical University of Athens School of Applied Mathematical and Physical Sciences Physics Department Laboratory of Optoelectronics, Lasers and their Applications Laser Remote Sensing Unit

Supervisor: Professor Papayannis Alexandros, National Technical University of Athens

January 2023



This research work was supported by the Hellenic Foundation for Research and Innovation (HFRI) under the HFRI Ph.D. Fellowship grant (Fellowship Number: 669).

## **Advisory Committee**

Papayannis Alexandros | Professor (Supervisor) National Technical University of Athens

Kokkalis Panagiotis Assistant Professor (Co-Supervisor) University of Kuwait, Kuwait

Giannakaki Elina | Assistant Professor National and Kapodistrian University of Athens

## **Examination Committee**

Papayannis Alexandros | Professor (Supervisor) National Technical University of Athens

Kokkalis Panagiotis | Assistant Professor (Co-Supervisor) University of Kuwait, Kuwait

Giannakaki Elina | Assistant Professor National and Kapodistrian University of Athens

**Georgakilas Alexandros** Professor National Technical University of Athens

Komppula Mika | Senior Researcher Finish Meteorological Institute

**Remoundaki Emmanouela** | Professor National Technical University of Athens

Karellas Sotirios Professor National Technical University of Athens

# ΚΑΤΗΓΟΡΙΟΠΟΙΗΣΗ ΑΕΡΟΛΥΜΑΤΩΝ ΜΕ ΧΡΗΣΗ ΕΠΙΓΕΙΑΣ/ΔΟΡΥΦΟΡΙΚΗΣ ΤΗΛΕΠΙΣΚΟΠΗΣΗΣ LIDAR

## ΔΙΔΑΚΤΟΡΙΚΗ ΔΙΑΤΡΙΒΗ

## ΜΥΛΩΝΑΚΗ ΜΑΡΙΑ

Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο Σχολή Εφαρμοσμένων Μαθηματικών και Φυσικών Επιστημών Τομέας Φυσικής Εργαστήριο Οπτοηλεκτρονικής, Laser και Εφαρμογών τους

Επιβλέπων: Καθηγητής Αλέξανδρος Παπαγιάννης, Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο

Ιανουάριος 2023



Η ερευνητική εργασία υποστηρίχτηκε από το Ελληνικό Ίδρυμα Έρευνας και Καινοτομίας (ΕΛ.ΙΔ.Ε.Κ.) στο πλαίσιο της Δράσης «Υποτροφίες ΕΛ.ΙΔ.Ε.Κ. Υποψηφίων Διδακτόρων» (Αριθμός Υποτροφίας: 669).

## Τριμελής Συμβουλευτική Επιτροπή

Παπαγιάννης Αλέξανδρος | Καθηγητής (Επιβλέπων) Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο

**Κόκκαλης Παναγιώτης** Επίκουρος Καθηγητής (Συν-Επιβλέπων) Πανεπιστήμιο Kuwait, Kuwait

> **Γιαννακάκη Ελίνα** Επίκουρη Καθηγήτρια Εθνικό & Καποδιστριακό Πανεπιστήμιο Αθηνών

## Επταμελής Εξεταστική Επιτροπή

Παπαγιάννης Αλέξανδρος | Καθηγητής (Επιβλέπων) Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο

**Κόκκαλης Παναγιώτης** Επίκουρος Καθηγητής (Συν-Επιβλέπων) Πανεπιστήμιο Kuwait, Kuwait

> **Γιαννακάκη Ελίνα** Επίκουρη Καθηγήτρια Εθνικό & Καποδιστριακό Πανεπιστήμιο Αθηνών

**Γεωργακίλας Αλέξανδρος** | Καθηγητής Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο

Komppula Mika Διευθυντής Ερευνών/Senior Researcher Μετεωρολογική Υπηρεσία Φιλανδίας

**Ρεμουντάκη Εμμανουέλα** Καθηγήτρια Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο

**Καρέλλας Σωτήριος** | Καθηγητής Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο

## $DEDICATION/A\Phi IEP \Omega\Sigma H$

Στο Δημήτοη.. Στη Φοίντα!

## ACKNOWLEDGMENTS

This dissertation was elaborated in the Department of Physics, School of Applied Mathematical and Physical Sciences, NTUA. But, as with any piece of research that results in the production of a Thesis, there should be not only the name of the researcher, but also the names of all those who, to varying degrees, provided assistance, encouragement, and guidance. Therefore, I want to acknowledge all those who have supported and helped me complete this doctoral Thesis.

First and foremost, I would like to express my gratitude to my supervisor, *Prof. Papayannis Alexandros*, for his encouragement, guidance, and support throughout all these years. Secondly, I warmly thank all members of my Advisory Committee for their suggestions on improving this Thesis and especially *Prof. Giannakaki Elina* for providing the SCAN algorithm. Also, I would like to thank all those outside NTUA I have been collaborating with (*Chalvatzaki Eleytheria, Diapouli Evangelia, Doina Nicolae, Eleftheriadis Kostantinos, Georgopoulou Maria, Giannakaki Elina, Gini Maria, Kokkalis Panagiotis, Komppula Mika, Lazaridis Michalis, Nenes Athanasios, Papagiannopoulos Nikos, Pandis Spyros, Piliou Marika, Solomos Stavros, Veselovskii Igor)* for their contribution to my publications, and especially *Prof. Nenes Athanasios* not only for suggesting the use of the term "OP dose rate", but for his continuous guidance. Last but not least, I thank all the members of our laboratory -the LRSU team- for sharing their opinions and being supportive when it was needed.

In producing this Thesis, I faced my final academic challenge: to gain a Ph.D. I am very grateful to those who gave me so much of their time and energy.

Thank you, Maria Mylonaki

# ABSTRACT

Aerosol particles directly affect the Earth's radiation budget by interacting mainly with ultraviolet solar radiation through absorption and scattering (aerosol-radiation interaction). For example, purely scattering aerosols include sulfates, nitrates, ammonium, and sea-salt particles. On the other hand, absorbing aerosols are primarily black carbon, while organic carbon and dust aerosols partly absorb in the ultraviolet spectrum. Furthermore, aerosols affect cloud formation and lifetime serving as seeds (cloud condensation nuclei, ice nuclei) upon which cloud droplets and ice crystals form, changing the cloud albedo and the Earth's radiation equilibrium once more. The processes of aerosol-radiation interaction depend on the aerosol size, shape, morphology, absorption, solubility, etc.; thus, knowledge of the aerosols' chemical composition and mixing state in the atmosphere is essential for modeling their impact on the Earth's radiation budget. It is well established that the Mediterranean basin is, frequently, affected by significant aerosol emissions from Africa, Europe and Turkey and it is characterized by high evaporation, low precipitation, and remarkably high solar activity. The specific role of aerosols, which are modified by atmospheric aging and mixing processes, makes this area an interesting case for climate change studies.

Atmospheric aerosols are emitted directly as particles (primary aerosol) or formed in the atmosphere by gas-toparticle conversion processes (secondary aerosol). Primary aerosols arise from natural sources, such as windborne dust, sea spray, and volcanoes, and anthropogenic activities, such as the fuel combustion. Aerosol classification refers to the processes by which aerosol observations are associated with an aerosol type. In practice, several aerosol types are characterized by their origin, e.g., urban, dust, marine, and biomass burning. Thus, one way to characterize an aerosol layer is based on tools that identify the source region of the observed aerosols (i.e., air-mass backward trajectory analysis ending over the observation site, atmospheric models, concurrent satellite products, and ground-based photometric data, etc.).

An emerging technique for aerosol detection and characterization which received much attention in the last decades is the light detection and ranging (lidar). Advanced systems, such as multiwavelength Raman lidars, can retrieve near-real-time information on the vertically resolved extensive (mass-dependent) and intensive (type-dependent) aerosol optical properties (namely the backscatter and extinction coefficient, lidar ratio, Ångström exponent and linear particle depolarization ratio) with high spatial (few meters) and temporal (from seconds to minutes) resolution.

Towards this direction, two automated methods have been developed: (1) the Mahalanobis distance aerosol classification algorithm (MD) and (2) a neural network aerosol classification algorithm (NATALI), both based on aerosol intensive properties in order to classify aerosol layers observed by lidars into different categories. However, in reality, the intensive aerosol optical properties can vary greatly even for a single aerosol type due to the atmospheric aging and the mixing processes particles may undergo during their lifetime. For example, fresh biomass burning aerosols present higher Ångström exponent values than aged ones. Additionally, the lidar ratio values of dust, can vary significantly depending on the source mineralogy and the aging processes. Considering that both NATALI and MD are based on the aerosol intensive optical properties, they experience several limitations, thus, a more generic aerosol classification code free from these defects was needed.

To fill this scientific lack, an improved automated aerosol layer classification algorithm known as Source Classification Analysis (SCAN) has been introduced, based on air-mass backward-trajectory analysis and satellite data.. SCAN is based on the amount of time that the air parcel spends over an already characterized aerosol source region and several additional criteria. The advantage of this algorithm is that its classification

process is not affected by the overlapping values of the optical properties representing more than one aerosol type (e.g., clean continental, continental polluted, smoke). Moreover, it has no limitations concerning its ability to classify aerosol mixtures and it can be useful for all lidar systems (regardless of the number of their channels) as well as for other network-based systems (radar profilers, sun photometers).

In Part A of this Ph.D. Thesis, we compare the three independent aerosol classification methods: NATALI, MD, and SCAN revealing their strengths and limitations. Additionally, the aerosol optical properties of 5 free-tropospheric aerosol mixtures and the aerosol microphysical properties of 2 free-tropospheric aerosol mixtures are provided, giving valuable insights into the properties of aerosol mixtures observed over Europe, emphasizing those observed over the eastern Mediterranean region (Greece). The latter are, later, used for estimating the direct radiative effects of the most representative aerosol types observed over Athens, Greece. Additionally, an innovative method of discriminating between the smoke and continental polluted aerosol types is discussed, which may be a prohibitive procedure when only the aerosol optical properties are used because smoke and continental polluted aerosols frequently exhibit common optical property values. Finally, tropospheric aerosol remote sensing observations over Volos, Greece, and the corresponding aerosol particle linear depolarization ratio values are presented.

Apart from the aerosols' perturbation on the Earth's radiation budget, the inhalable particulate matter (PM) is considered responsible for several health problems, from short-term respiratory diseases to premature mortality. However, the severity of the hazard caused by inhaled particles depends not only on the inhalable  $PM_{10}$  or  $PM_{2.5}$  (aerosols with aerodynamic diameter  $<10 \mu$ m or  $<2.5 \mu$ m, respectively) mass concentrations but also on the area at which they deposit within the respiratory system. This area is variable due to differences in the individual's airway geometry and breathing pattern, as well as, the particle's size and shape. Additionally, recent studies suggest that PMs with different chemical composition behave differently inside the human body after inhalation, depending on their solubility and toxicity. The latter interactions are complex due to aerosols' variable physical properties and chemical composition, depending on meteorological conditions, emission sources and atmospheric aging. More precisely, inhalation of PMs containing transition metals (such as Fe, Cr, Cu, Co, Zn, Ni) or organic compounds (including quinones, polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs)) can induce the formation of Reactive Oxygen Species (ROS) in vivo, which may lead to oxidative stress, inflammation or even cell death, leading later to various diseases. In other words, PM damage to human health is not an isolated process, as their chemical composition plays a crucial role.

In this regard, there has been insufficient information to make clear conclusions about the health effects among different aerosol components or sources (sulfates, nitrates, organics, crustal materials, black carbon) and, especially, smoke from biomass combustion, including their capacity to induce oxidative stress to body cells. Moreover, all computational aerosol deposition models require additional verification with real input data. Thus, Part B of this Thesis aims on: a) providing a quantitative evidence of the risks that PMs (of different aerosol sources) can have on the human respiratory tract (RT), b) giving an insight into the toxicology of different aerosol types and finally, c) comparing the results of the three different aerosol dosimetry models.

# CONTENTS

Acknowl	edgments	
Abstract	•••••••••••••••••••••••••••••••••••••••	11
Contents		
Chapter	1. Theoretical Background	
1.1. Th	e Earth's Atmosphere	
111	Stratification	19
1.1.1.	Composition	19
1.1.2. 1.2 Dou	composition	
1.2. Das		
1.2.1.	Theory	19
1.2.2.	The Library for Radiative Transfer (Libradtran)	21
1.3. Atı	mospheric Aerosols	
1.3.1.	Sources	22
1.3.2.	Size and Lifetime	23
1.3.3.	Global Distribution	24
1.3.4.	Types	25
1.3.4.1.	Continental Polluted	25
1.3.4.2.	Clean Continental	25
1.3.4.3.	Marine	25
1.3.4.4.	Dust	25
1.3.4.5.	Biomass Burning	
1.3.4.6.	Volvanic Ash	26
1.4. Ae	rosol-Light Interactions	
1.4.1.	Absorption	
1.4.2.	Elastic Scattering (Rayleigh-Mie)	26
1.4.3.	Inelastic Scattering (Raman)	27
1.4.4.	Depolarization	27
1.5. Lig	ght Detection and Ranging	
1.5.1.	Basic Lidar Setup	

1.5.2.	The Lidar Equation					
1.5.3.	Lidar Types29					
1.5.3.1	. By Setup					
1.5.3.2	By Physical Principle					
1.6. A	erosol Properties					
1.6.1.	Optical Properties					
1.6.2.	Microphysical Properties					
1.7. A	erosol Typing					
1.7.1.	Forward Typing					
1.7.1.1	. Source Classification Analysis (SCAN)					
1.7.2.	Backward Typing40					
1.7.2.1	. Mahalanobis Distance Aerosol Classification Algorithm (MD)					
1.7.2.2	. Neural Network Aerosol Classification Algorithm (NATALI)					
1.8. A	erosol Dosimetry Models42					
1.8.1. Multiple-Path Particle Dosimetry model (MPPD)						
1.8.2.	Exposure Dose Model 2 (ExDoM2)					
1.8.3. (RETR.	Particle Transport and Deposition Model and Lung Clearance/Retention Model AC)					
1.9. O	xidative Potential Analysis43					
Chapter	· 2. Methodology					
2.1. C EARLI	omparison of the Different Aerosol Typing Techniques over 4 NET Stations					
2.2. A	erosol Typing over Athens, Greece46					
2.3. A	Aerosol Typing over Volos, Greece48					
2.4. A	Aerosol Radiative Effect Assessment49					
2.5. A	5. Aerosol Human Health Risk Assessment50					
Chapter	<sup>•</sup> 3. Results & Discussion53					
3.1. C	omparison of the Three Aerosol Typing Techniques					
3.1.1.	NATALI versus MD					
3.1.2.	MD versus SCAN					
	14					

3.1.3.	.3. SCAN versus NATALI		
3.1.4.	A Case Study (Potenza, 30.07.2015)		
3.2. Op	otical Properties of Aerosol Layers Observed over 4 EA	RLINET Lidar	
Sites (201	15-2018)	61	
3.2.1.	Clean Continental (cc) aerosols	63	
3.2.2.	Continental Polluted (cp) aerosols	63	
3.2.3.	Smoke (s) aerosols	63	
3.2.4.	Marine/Cloud-Contaminated (m/cc) aerosols	63	
3.2.5.	Dust and Marine (d+m) aerosols		
3.2.6.	Continental Polluted and Smoke (cp+s) aerosols	63	
3.2.7.	Continental Polluted and Marine (cp+m) aerosols	64	
3.2.8.	Continental Polluted, Dust, and Marine or Cloud Contaminated (cp 64	+d+m/cc) aerosols	
33 Pa	rticle Linear Depolarization Ratio of Aerosol Lavers	Observed over	

## 3.3. Particle Linear Depolarization Ratio of Aerosol Layers Observed over the City of Volos, Greece during the PANACEA Summer Campaign (July 2019) 64

3.3.1.	Continental Polluted (cp) aerosols	65
3.3.2.	Smoke (s) aerosols	65
3.3.3.	Continental Polluted and Marine (cp+m) aerosols	65
3.3.4.	Mixed Dust (md) aerosols	67

## 3.4. Optical and Microphysical Properties of Smoke Aerosol Layers and Mixtures Observed over the EARLINET Lidar Site of Athens, Greece (2011-2019) 68

3.4.1	l. Smol	Smoke (s) aerosols						
3.4.2	2. Smol	Smoke and Continental Polluted (s+cp) aerosols						
3.4.3. Smoke and Mixed Dust (s+md) aerosols					73			
3.5.	Optical	Properties	of Vario	ous Aerosol	Types	Observed	over	the
EARLINET Lidar Site of Athens, Greece (2014-2019)74								
351	Cont	inental Polluted	d (cp) aeroso	ls				74

5.5.1.	continentar i onated (ep) actosois
3.5.2.	Continental Polluted and Marine (cp+m) aerosols74
3.5.3.	Dust (d) aerosols74

3.5.4	4. Mixed Dust (md) aerosols
3.6. over	Regional Direct Radiative Effects of Various Aerosol Types Observed a Typical Mediterranean Lidar Site (2014-2019)
3.7. from	Regional Direct Radiative Effects of an Extreme case of Wildfire Smoke the Long-Lasting Greek Wildfires in August 2021
3.8.	Wildfire smoke and Sahara Dust Aerosol's Oxidative Potential, Exposure
and I	Dose79
3.8.	Pollutants Mass Concentrations
3.8.2	2. Aerosol Deposition Rates
3.8.	3. Comparison between the Dosimetry Models
3.8.4	4. Air-volume- $(OP^{DTTv})$ and mass-normalized $(OP^{DTTm})$ $OP$
3.8.	5. OP Dose Rates
Chap	oter 4. Conclusions
Chap	oter 5. Εκτενής Περίληψη93
5.1.	Εισαγωγή93
5.2.	Μεθοδολογία
5.2.	<ol> <li>Σύγκριση των 3 μεθόδων κατηγοριοποίησης αερολυμάτων</li></ol>
5.2.2	2. Κατηγοριοποίηση αιωρούμενων σωματιδίων στην πολη του Βόλου
5.2.3	3. Κατηγοριοποίηση αιωρούμενων σωματιδίων στην πόλη της Αθήνας
5.2.4 ακτι	4. Μελέτη της επίδρασης των αιωρούμενων σωματιδίων στο ενεργειακό ισοζύγιο νοβολίας της ατμόσφαιρας97
5.2.: δαστ αερα	5. Μελέτη των κινδύνων που ενέχει η εισπνοή αερολυμάτων καύσης βιομάζας από τις ικές πυρκαγιές του Αυγούστου 2021 στη βόρεια Αττική και Εύβοια και ερημικών ολύματων από την έρημο Σαχάρα
5.3.	Αποτελέσματα99
5.3.	<ol> <li>Σύγκριση των 3 μεθόδων κατηγοριοποίησης αερολυμάτων</li></ol>
5.3.2 σταθ	<ol> <li>Οπτικές ιδιότητες αιωρούμενων σωματιδίων που παρατηρήθηκαν σε 4 διαφορετικούς θμούς του δικτύου EARLINET (2015-2018)104</li> </ol>
5.3 Βόλ	3. Οπτικές ιδιότητες αιωρούμενων σωματιδίων που παρατηρήθηκαν στην πόλη του ου κατά τη διάρκεια της πειραματικής εκστρατείας ΠΑΝΑΚΕΙΑ (Ιούλιος 2019)107

5.3.4. Οπτικές και μικροφυσικές ιδιότητες αιωρούμενων σωματιδίων καύσης βιομάζας που παρατηρήθηκαν στον σταθμό EARLINET της Αθήνας (2011-2019)......108

5.3.6. Επιπτώσεις αερολυμάτων που παρατηρήθηκαν από έναν τυπικό σταθμό lidar της ανατολικής Μεσογείου στο ενεργειακό ισοζύγιο της ατμόσφαιρας της περιοχής (2014-2019) 112

5.3.8. Ρυθμός δόσης αιωρούμενων σωματιδίων καύσης βιομάζας από τις καταστροφικές πυρκαγιές στη βόρεια Αττική και Εύβοια τον Αύγουστο του 2021 στο ανθρώπινο αναπνευστικό σύστημα 116

5.3.9.	Σύγκριση	των	τριών	μοντέλων	δοσιμετρ	ίας αερολ	υμάτων	ν στα	ο ανθρώπινο
αναπνευσ	στικό σύστημ	ια	•••••				•••••	•••••	
5.3.10.	Οδειδωτικά	δυν	ναμικό	σωματιδίων	καύσης	βιομάζας	από 1	τις κ	αταστροφικές
πυρκαγιέ	ς στη βόρεια	Αττι	κή και l	Εύβοια τον Α	ύγουστο τ	ου 2021	•••••	•••••	
5311	Ρυθμός δό	THC O	ειδωτι	κού δυναμικο	ໜ໌ ອາດາດກຳ	പട്ഷാം പ	ιατιδίων	ν καύ	σης βιομάζας

5.3.11. Ρυθμός δόσης οξειδωτικού δυναμικού αιωρούμενων σωματιδίων καύσης βιομάζας από τις καταστροφικές πυρκαγιές στη Βόρεια Αττική και Εύβοια τον Αύγουστο του 2021..127

5.4.	Σύνοψη	
App	endix	
Refe	rences	
Scho	larships and Awards	
Wor	kshops, Meetings, Conferences	
List	of Publications	

# CHAPTER 1. THEORETICAL BACKGROUND

## 1.1. THE EARTH'S ATMOSPHERE

### 1.1.1. STRATIFICATION

Various gases, molecules and aerosols surrounding our planet form the Earth's atmosphere. Earth's atmosphere supports life on our planet by creating pressure and allowing for liquid water to exist on the surface, by absorbing the harmful ultraviolet solar radiation, by warming the surface through heat retention (greenhouse effect), and finally, by reducing temperature extremes between day and night (the diurnal temperature variation).



Figure 1. Earth's atmospheric stratification (from <a href="https://www.worldatlas.com/articles/what-are-the-5-layers-of-the-earth-s-atmosphere.html">https://www.worldatlas.com/articles/what-are-the-5-layers-of-the-earth-s-atmosphere.html</a>).

Even though, air pressure and density generally decrease with altitude in the atmosphere, the temperature has a more complicated vertical distribution, with a positive or negative gradient depending on the region (left part of Figure 1). Thus, the temperature behavior provides a useful metric to distinguish atmospheric layers. In this way, Earth's atmosphere can be divided (atmospheric stratification) into five main layers: troposphere, stratosphere, mesosphere, thermosphere, and exosphere (Figure 1).

### 1.1.2. Composition

Dry air contains 78.08% nitrogen, 20.95% oxygen, 0.93% argon, 0.04% carbon dioxide, and small amounts of other gases. The atmosphere has a mass of about  $5.15 \times 10^{18}$  kg, three quarters of which is within about 11 km from the surface (i.e., within the troposphere). The atmosphere becomes thinner with increasing altitude, with no definite boundary between the atmosphere and outer space. The Kármán line, at 100 km or 1.57% of Earth's radius, is often used as the border between the atmosphere and outer space (McDowel, 2018).

## 1.2. BASICS ON ATMOSPHERIC RADIATION

### 1.2.1. THEORY

The electromagnetic radiation emitted by the Sun is within a spectral region of 0.2-5  $\mu$ m, and is normally referred to as solar radiation (shortwave), whereas the terrestrial thermal (longwave) emission is within the spectral region from ~3 to 100  $\mu$ m (Figure 2). The solar spectrum has its maximum in the visible spectral interval of 0.4-0.7  $\mu$ m

and can be perceived by the human eye, whereas the terrestrial thermal emission maximum is located approximately at the midinfrared (mid-IR) region around  $10 \,\mu$ m.



Figure 2. Comparison of the solar and terrestrial radiation emitted by the Earth (Lutgens, 2019).

Both the solar radiation and the terrestrial thermal emission undergo through several processes before leaving the atmosphere (Figure 3). In particular, from the 340 Wm<sup>-2</sup> of the incoming solar radiation (yellow arrows, left half of Figure 3) a total of 100 Wm<sup>-2</sup> is reflected back into space, as scattered by the Earth's surface (SRF) and atmospheric consituents (clouds, aerosols, molecules), whereas, approximately 80 Wm<sup>-2</sup> are absorbed by the atmosphere and about 160 Wm<sup>-2</sup> are absorbed by the land and oceans.



Figure 3. Schematic diagram of the global annual mean energy balance of the Earth. Numbers indicate best estimates for the magnitudes of the globally averaged energy balance components together with their uncertainty ranges in parentheses, representing present day climate conditions at the beginning of the twenty-first century. The surface thermal upward flux contains both the surface thermal emission and a small contribution from the reflected part of the downward thermal radiation. Units  $Wm^{-2}$  (Wild et al., 2015).

The solar radiation absorbed by the atmosphere and by the SRF, is transformed into thermal energy (orange arrows, right half of Figure 3). Approximately 398 Wm<sup>-2</sup> is the thermal energy reemitted by the SRF. Some of this energy is absorbed by clouds and trace gases and is reemitted at lower temperatures, while a smaller amount penetrates through the atmosphere in the so-called *atmospheric window* regions (optical, infrared, radio) without being absorbed. Thus, about 239 Wm<sup>-2</sup> of thermal energy is emitted to space and 342 Wm<sup>-2</sup> returns back to the SRF.

At the top of the atmosphere (TOA), 239  $\text{Wm}^{-2}$  of the thermal radiation escapes the Earth-atmosphere system, while almost the same amount effectively enters the system in the solar spectral region to maintain the energy equilibrium of the climate system. However, the solar and thermal radiation is not in equilibrium at the SRF: (160-398+342  $\text{Wm}^{-2} = 104 \text{ Wm}^{-2}$ ). Thus, the SRF continuously gains electromagnetic radiant energy and the deficit is balanced by latent and thermal heat transfer (black and red arrows, central part of Figure 3).

#### 1.2.2. THE LIBRARY FOR RADIATIVE TRANSFER (LIBRADTRAN)

Libradtran (Emde, et al., 2016; Mayer & Kylling, 2005; http://www.Libradtran.org) is a widely used software package for radiative transfer calculations. It allows to compute (polarized) radiances, irradiance, and actinic fluxes in the solar and thermal spectral regions. Since the Libradtran package, originally, was a radiative transfer code for the UV spectral range, the main executable is still called uvspec, though, now covers the complete solar and thermal spectral range.

When using uvspec radiation transfer model, the user decides which parametrizations, concerning the atmospheric conditions (such as the molecular, aerosol, trace gas, temperature and pressure vertical distributions), the solar zenith angle, the surface land coverage and which radiative transfer solver according to the needs of the study. In our study, the midlatitude summer and winter cloud-free conditions depending on the date were used for a typical Air Force Geophysics Laboratory Atmospheric Constituent Profile (Clough, 1986) concerning the atmospheric profiles of temperature, pressure and trace gases. A rural type aerosol in the Planetray Boundary Layer (PBL), a background aerosol content over 2 km height, spring-summer conditions and a meteorological visibility of 50 km were assumed according to the aerosol model by Shettle, (1989). Concerning the molecular parametrizations, the correlated-k-parameterizations by Kato et al. (1999) and Fu and Liu (1992) were used here for the calculation of integrated solar and thermal irradiance and heating rates, as well as heating/cooling rates higher in the atmosphere (above ~20 km; Emde, et al., 2016).

Moreover, in planetary atmospheres the Cartesian and spherical geometries are most common. Here, the Cartesian geometry and the plane-parallel approximation were used: that is the Flat Earth approximation, which basically means that the atmosphere is divided into parallel layers of infinite extensions in the x- and y-directions for the irradiances calculation.

To provide these irradiances the Boltzmann equation must be solved. Briefly, the Boltzmann equation in a general geometry, in a steady state situation, in the absence of relativistic effects and supposing that the photons propagate in straight lines can be written as

$$(\hat{n}\nabla)I(\vec{r},\hat{n},N) = hvQ(\vec{r},\hat{n},N)$$
(1)

The integro-differential Equation (1) gives the radiance field when solved with appropriate boundary conditions, that is, the radiation incident at the SRF and the TOA. At the SRF, the Earth partly reflects radiation and also emits radiation as a quasi-black-body. At the TOA, a parallel beam of sunlight in the direction  $\mu_0$  may be present. Hence, the intensity field is written as the sum of the direct (dir) and the scattered (sca) (or diffuse) radiation

$$I(z,\mu,\varphi) = I^{dir}(z,\mu_0,\varphi_0) + I^{sca}(z,\mu,\varphi)$$
<sup>(2)</sup>

where  $\mu_0$  and  $\phi_0$  are the solar zenith and azimuth angles, respectively.

The diffuse radiative transfer equation is solved subject to boundary conditions at the TOA and SRF. At the TOA there is no incident diffuse intensity, while, the SRF condition may quite generally be formulated in terms of a bidirectional reflectivity and directional emissivity. In the case of a Lambertian reflecting SRF (isotropic

reflection of the radiation) the first equals the surface albedo, while the latter is also, a function of the surface albedo. For our study, the surface albedo was set to 0.15 for the urban area of Athens (Dhakal, 2002).

The disort radiative transfer solver (Stamnes, et al., 1988. 1-D geometry, http://www.Libradtran.org/lib/exe/fetch.php?media=disortreport1.1.pdf) solves Equation 2. The standard disort solver is probably the most versatile, well-tested and mostly used 1D radiative transfer solver on this planet and for this study was used for the calculation of the downwelling and upwelling shortwave (SW,  $0.3-3 \mu m$ ) and longwave (LW,  $3-30 \mu m$ ) irradiances. Specifically, the outputs of disort solver are the irradiance in Wm<sup>-2</sup>: the direct (edir), the diffuse downward (edn), the diffuse upward (eup), as well as, the heating rates (heat) in  $Kd^{-1}$ , separately for the SW and LW radiation. Thus, the perturbation in flux in the atmosphere caused by the presence of an aerosol layer in relation to that under clear-sky conditions, DRE<sub>aer</sub>, can be expressed as

$$DRE_{aer}(z) = \Delta F_{aer}(z) - \Delta F_{clear}(z)$$
(3)

where

$$\Delta F(z) = e_{dir}(z) + e_{dn}(z) - e_{up}(z) \tag{4}$$

Based on this definition, the  $DRE_{aer}$  at a given altitude will be positive when the aerosols cause a heating effect and negative when they cause a cooling effect.

DRE is calculated separately for SW and LW radiation, thus

$$DRE(z) = DRE_{aer,LW}(z) + DRE_{aer,SW}(z)$$
(5)

Finally, the heating rates can be calculated as

$$\frac{\partial T}{\partial t} = -\frac{4\pi}{c\rho} \frac{\partial F}{\partial z} \tag{6}$$

where cp is the specific heat of dry air at constant pressure.

The uncertainties of Libradtran model were assessed by Emde et al. (2016), who showed that the estimated radiance and irradiance results agree very well with a reference validated model, presenting differences lower than 0.05%. Finally, instantaneous aerosol radiative forcing values simulated with Libradtran have been compared with values provided by AERONET (Obregón, et al., 2017). The comparison showed a very good agreement at both the SRF and the TOA.

## 1.3. Atmospheric Aerosols

#### **1.3.1. SOURCES**

Atmospheric aerosols are emitted directly by sources (primary aerosol) or formed in the atmosphere by gas-toparticle conversion processes (secondary aerosol) (Pöschl, 2005). Primary aerosols arise from natural sources, such as arid areas, oceans, and volcanoes, and anthropogenic activities, such as combustion of fuels (Figure 4).



Figure 4. Sources and appearance of atmospheric aerosols. Top: local and large scale air pollution. Sources include (bottom, counterclockwise) volcanic eruptions (producing volcanic ash and sulphate), sea spray (sea salt and sulphate aerosols), desert storms (mineral dust), savannah biomass burning (BC and OC), coal power plants (fossil fuel BC and OC, sulphate, nitrate), ships (BC, OC, sulphates, nitrate), cooking (domestic BC and OC), road transport (sulphate, BC, VOCs yielding OC). Center: Electron microscope images of (A) sulphates, (B) soot, (C) fly ash, a product of coal combustion (Pósfai, et al., 1999) © 2013 Nature Education Images courtesy of Eyjafjallajökull eruption: courtesy of Árni Friðriksson, Wikimedia commons; Sea spray: NASA/JPL; Desert storm: Wikimedia commons; Savannah biomass burning: Wikimedia Commons ; Coal power plants: Wikimedia Commons; Ship in a Norwegian fjord: Stefan Großmann, Wikimedia commons; Cooking: Fullerton et al.2009; Truck: U. S. EPA, Wikimedia commons.

#### 1.3.2. Size and Lifetime

Atmospheric aerosols are generally considered to range in size from a few nanometers (nucleation and Aitken mode, ultrafine, nanoparticles) to tens of micrometers (accumulation and coarse mode) in diameter (Figure 5). The particle number size-distribution of the particle size typically exhibit one or several modes which result from different source and sink mechanisms (Figure 5). These modes overlap in the size spectrum, because the particles sizes continuously change (atmospheric aging) due to various physical (condensation, coagulation, fragmentation and evaporation) and chemical interactions and transformations, resulting to changes of particle size structure and composition (Pöschl, 2005).



Figure 5. Schematic multi-modal particle size distribution with typical transformations and example particle types within each mode (from <a href="https://www.dwd.de">https://www.dwd.de</a>).

Depending on their size, aerosols lifetime can vary greatly (Figure 6). For example, the lifetime of freshly formed particles, i.e. from sulfuric acid or volatile organic compounds, is limited by condensational losses onto existing

particles (condensational sink). The large particles are removed predominantly by sedimentation and wet/dry deposition.



Figure 6. Typical size-dependent residence times of particles in the atmosphere (modified from Prospero et al., (1983)).

#### **1.3.3. GLOBAL DISTRIBUTION**

Owing to their relatively short lifetime, aerosol concentrations typically peak near their source regions. Desert (such as North Africa and the Middle East), industrial (such as Europe and East and South Asia) and biomassburning regions (such as South America and South Africa) are, therefore, characterized by high mass concentrations. However, apart from their source emission areas, once in the atmosphere, aerosols can be transported to other regions, through the general atmospheric circulation (Figure 7). Thus, there is a large spatial and temporal variability in global aerosol composition.



Figure 7. Portrait of global aerosols produced by a GEOS-5 simulation at a 10-kilometer resolution. Dust (red) is lifted from the surface, sea salt (blue) swirls inside cyclones, smoke (green) rises from fires, and sulfate particles (white) stream from volcanoes and fossil fuel emissions (image credit: William Putman, NASA/Goddard).

#### 1.3.4. TYPES

Depending on their source regions aerosols are typically classified into the following categories:

#### 1.3.4.1. CONTINENTAL POLLUTED

Continental polluted aerosols are mixtures of primary particulate emissions from industries, transportation, power generation, and secondary material formed by gas-to-particle conversion mechanisms (Seinfeld, et al., 2016). The aerosol size distribution is quite variable in urban areas. Extremely high concentrations of fine particles (less than 0.1  $\mu$ m in diameter) are found close to sources (e.g., highways), but their concentration decreases rapidly with distance from the source (Seinfeld, et al., 1998).

#### 1.3.4.2. CLEAN CONTINENTAL

The clean continental type differentiates from the polluted continental type due to its less light absorbing properties. The clean continental influence affects the aerosol size distribution with increasing Aitken and accumulation mode concentration.

#### 1.3.4.3. MARINE

Marine atmospheric particle concentrations are generally in the range of 100-300 cm<sup>-3</sup>. Three modes usually characterize their size distribution: the Aitken (Dp < 0.1  $\mu$ m), the accumulation (0.1 < Dp < 0.6  $\mu$ m), and the coarse one (Dp > 0.6  $\mu$ m) (Fitzgerald, 1991). The sea-salt particles feature a predominant coarse mode. However, they are spherical in humid conditions and weakly absorbing, in contrast to the dust particles.

#### 1.3.4.4. Dust

Desert areas around the world emit vast quantities of dust aerosols that extend considerably over adjacent regions, such as oceans (Jaenicke, 1993). Dust number distribution tends to exhibit three overlapping modes at diameters of 0.01 µm or less, 0.05 µm, and 10 µm, respectively (Jaenicke, 1993).

#### MIXED DUST

Mixed dust usually refers to dust particles mixed with marine, smoke and/or continental polluted ones, thus having properties intermediate to marine and smoke or continental polluted aerosols.

Aerosol Type	Source	Particle characteristics
Clean Continental	Land surfaces	Medium size, medium spherical, medium absorbing
Dust	Desert surfaces	Large, non-spherical, medium absorbing
Continental polluted	Industrial sites	Small, spherical, highly absorbing
Marine	Sea surface	Large, aspherical, non-absorbing
Smoke	Vegetation fires	Small, spherical, highly absorbing
Volcanic	Volcanoes	Large, non-spherical, highly absorbing

Table 1. Conventional names, corresponding sources and particle characteristics of the basic aerosol types (Nicolae, et al., 2018).

#### 1.3.4.5. BIOMASS BURNING

Biomass burning is a primary global source of atmospheric aerosols. While fresh smoke is generally composed of fine particles between 20 and 60 nm in diameter (Levin, et al., 2010), condensation and coagulation cause rapid aerosol growth to larger sizes (over 100 nm) on timescales of often less than 24 h (Janhall, et al., 2010). However, Janhall et al. (2010) showed that the geometric mean diameter of aged biomass-burning particles is highly variable mainly dependin on fuel type and modified combustion efficiency.

#### 1.3.4.6. VOLVANIC ASH

Volcanoes are another important source of atmospheric aerosols. Volcanic eruptions eject great amounts of material in the atmosphere (tephra), while the fraction smaller than 2 mm is labeled as volcanic ash. Most of these aerosols will settle only a few tens of kilometers away from the volcano but smaller particles can travel thousands of kilometers and affect wider areas (Kokkalis et al., 2013; Mattis et al., 2010; Sicard et al., 2012).

## 1.4. AEROSOL-LIGHT INTERACTIONS

Depending on the aforementioned structural and compositional characteristics, aerosols can scatter and/or absorb shortwave radiation. The theory of particle light absorption and scattering is of interest for calculating and understanding aerosol radiative transfer in the atmosphere.

#### 1.4.1. Absorption

Aerosol light absorption in the atmosphere is dominated by black carbon (BC) with additional, significant contributions from the still poorly understood brown carbon and from mineral dust. Sources of these absorbing aerosols include biomass burning and other combustion processes and dust entrainment. Briefly, aerosol light absorption transforms electromagnetic energy into thermal energy, thereby heating the absorbing particles and their surroundings.

The absorption of an individual particle is generally characterized by its absorption cross-section  $\sigma_{abs}$  (common unit:  $m^2$ ) and its absorption efficiency  $Q_{abs}$  which for spherical particles is:

$$Q_{abs} = \frac{\sigma_{abs}}{\sigma_{geometrical}} = \frac{\sigma_{abs}}{\pi r^2} \tag{7}$$

#### 1.4.2. ELASTIC SCATTERING (RAYLEIGH-MIE)

While absorption simply removes photons, or energy, from a beam of radiation, scattering can redirect the beam of radiation into other directions, where it can be absorbed or scattered some more. Specifically, Rayleigh scattering describes the elastic scattering of light by spheres that are much smaller than the wavelength of light (Figure 8), whereas the intensity of the scattered radiation in different directions strongly depends on the radiation's wavelength and on the aerosol's geometrical, optical and chemical characteristics.

The Rayleigh scattering model breaks down when the particle size becomes larger than around 10% of the wavelength of the incident radiation. In the case of particles with dimensions greater than this, the Mie scattering prevails (Figure 8). Dust, pollen, smoke and microscopic water droplets forming clouds are common causes of Mie scattering.



Figure 8. Types of elastic scattering in the atmosphere. The type of scattering is a function of the wavelength of the incident radiant energy, and the of the gas molecule, aerosol particle and/or water vapor droplet encountered (from size https://user.engineering.uiowa.edu/~ece195/2006/docs/Rayleigh.pdf).

#### 1.4.3. INELASTIC SCATTERING (RAMAN)

Inelastic light signals emerge from the spontaneous Raman scattering effect by molecules, which absorb a part of the photon's energy or add an amount of energy to the photon's energy. Due to this inelastic scattering, these molecules change their vibrational and/or rotational state. Thus, the backscattered light experiences a frequency shift caused by its change of energy. This shift is characteristic for the scattering molecules; here we schematically display the example of Raman scattering by the atmospheric nitrogen (Figure 9).



Figure 9. Schematic illustration of Raman scattering by the nitrogen molecules (modified from Jabłoństski, 1933).

#### 1.4.4. DEPOLARIZATION

Electromagnetic scattering by small particles can result in changing the polarization state of the incident light. When the incident beam is fully linearly or circularly polarized, the scattered light may become partially polarized or even totally unpolarized, and this phenomenon is called depolarization (Figure 10). Usually, spherical particles, like smoke aerosols or cloud droplets, cause zero depolarization, whereas spheroids or metals, like dust aerosols and pollen or ice-crystals, can produce considerable light depolarization of the backscatter light.



**Figure 10.** Depolarization of laser polarized light by a spherical and a non-spherical aerosol. Spheres cause zero depolarization of the backscattered light whereas non-spheres produce considerable light depolarization during the backscattering process (<u>https://www.tropos.de/en/research/projects-infrastructures-technology/technology-at-tropos/remote-sensing/polarization-lidar</u>).

## 1.5. LIGHT DETECTION AND RANGING

The absorption and scattering aerosol characteristics can be provided by the so-called LIght Detection and Ranging (lidar) technique which provides the aerosol optical properties. This is a method for determining variable distances by targeting an object or a surface with a laser and measuring the time for the scattered to a 180° angle (backscattered) light to return to the receiver (Weitkamp, 2005). In our applications, this method is based on the backscattered laser light by atmospheric aerosols and molecules.

### 1.5.1. BASIC LIDAR SETUP

A typical lidar consists of two units, the transmitter and the receiver. A simplified representation of a typical lidar setup is demonstrated in Figure 11. The transmission unit consists of a pulsed laser source which is sent, vertically, to the atmosphere. Part of the transmitted radiation is scattered by the atmospheric components (i.e., gases, molecules, aerosols, clouds) backward to the lidar system, where it is collected by a receiving telescope. The backscattered laser light is converted to electrical signal and stored in a computer unit for further signal processing and analysis.



Figure 11. Principle setup of a lidar system (Weitkamp, 2005).

#### **1.5.2. THE LIDAR EQUATION**

From the pulsed laser beam sent vertically up to the atmosphere and scattered by the atmospheric molecules and particles into various directions, only a small fraction is scattered to a 180° angle respect to the transmission unit, thus finally collected by the receiver unit (Figure 12).

The power  $P(R,\lambda)$  of the backscattered light is given then by the so-called lidar equation:

$$P(R) = KG(R)\beta(R)T(R)$$
(8)

where *K* is an experimentally controlled system constant and *G*(*R*) is a range-dependent geometrical factor which can be also experimentally determined. The last two parameters describe the atmosphere-light interactions and are these quantities which when calculated can provide the optical characteristics, the so-called aerosol optical properties. Specifically,  $\beta$ , namely the backscatter coefficient (common units: m<sup>-1</sup> or Mm<sup>-1</sup>=10<sup>-6</sup> m<sup>-1</sup>), is an atmospheric parameter which determines the strength of the backscattered laser light. It describes how much of the transmitted laser light is scattered by the atmosphere in the backward direction. The transmission term, *T*(*R*) is derived from the Lambert-Beer-Bouguer law and includes the extinction coefficient  $\alpha(r, \lambda)$  (common units: sr<sup>-1</sup> m<sup>-1</sup> or sr<sup>-1</sup> Mm<sup>-1</sup>=10<sup>-6</sup> sr<sup>-1</sup> m<sup>-1</sup>):

$$T(R) = e^{-2\int_0^R a(r,\lambda)dr}$$
(9)

T(R) expresses the part of laser light which is attenuated due to atmospheric scattering and absorption on the way from the emission unit to the scattering volume and backward. The integral describes the geometrical path between the lidar system and the scattering volume at distance R, whereas the factor 2 represents the forward and backward travel of the laser light.



Figure 12. Close look to a scattering aerosol volume from the lidar perspective (Weitkamp, 2005).

#### 1.5.3. LIDAR TYPES

#### 1.5.3.1. BY SETUP

There are many types of lidars classified by the way they are set up. Herein, we introduce only the ones used in the frame of this Thesis, namely the spaceborne, the ground-based static and the ground-based mobile lidars (Figure 13).



Figure 13. Different types of lidars based on their working platfrom: a) spaceborne CALIPSO's laser probing Earth's atmosphere (credits: P. Carril / CNES); b) ground-based, multi-wavelength Mie-Raman aerosol and ozone lidar system (EOLE) located at NTUA, Athens, Greece; c) AIAS mobile depolarization lidar of NTUA (credits for b and c: A. Papayannis).

#### Spaceborne

Spaceborne lidar systems are mounted on-board a spacecraft (space shuttle or satellite) orbiting the earth. A satellite follows a generally elliptical orbit around the earth. The time taken to complete one revolution of the orbit is called the orbital period. The satellite traces out a path on the earth surface, called its ground track, as it moves across the sky. As the earth below is rotating, the satellite traces out a different path on the ground in each subsequent cycle. Remote sensing satellites are often launched into special orbits such that the satellite repeats its path after a fixed time interval. This time interval is called the repeat cycle of the satellite.

The CALIOP elastic backscatter lidar system is onboard the Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation (CALIPSO; Winker, et al., 2009) polar-orbiting satellite, flying at an altitude of about 705 km, with a laser footprint covering 0.2% of the Earth's surface during one full cycle. It emits simultaneously at 532 and 1064 nm and provides vertically resolved aerosol and cloud properties on a global scale.

The CALIPSO processing involves three major steps (Winker, et al., 2009). First, cloud and aerosol layers are identified by a set of algorithms referred to as the selective iterative boundary locator (SIBYL), applied to the 532 nm attenuated backscatter vertical distributions. Second, a set of scene classification algorithms (SCA) classifies these layers by type. Using data from all three CALIOP channels, layers are identified as clouds or aerosols and the aerosol type and cloud ice–water phase are determined. Finally, the  $\beta_{aer}$  and  $\alpha_{aer}$  parameters are retrieved by the hybrid extinction retrieval algorithm (HERA). HERA performs retrievals within the layer boundaries identified by SIBYL. The retrieval requires an LR value, which is either derived from the layer transmittance measured from clear-air returns above and below the layer or from a prescribed value provided by the SCA typing algorithm. The typing algorithm is a decision tree that performs a number of tests using layer aver-aged depolarization and 532 nm attenuated backscatter to attempt to identify aerosol as one of the six defined types (Omar, et al., 2009): dust (40 sr/30 sr), smoke (70 sr/40 sr), clean continental (35 sr/30 sr), polluted continental (70 sr/30 sr, pollution from continental Europe), clean marine (20 sr/45 sr) and polluted dust (60 sr/30 sr, mixtures of dust and smoke from biomass burning). During the latest update of CALIPSO's algorithms for classification and lidar selection (Kim, et al., 2018), the tropospheric aerosol subtyping algorithm was improved by adding a new *dusty marine* aerosol subtype (mixtures of dust and marine aerosols near the ocean surface) and by renaming the polluted continental and smoke subtypes to polluted continental/smoke and elevated smoke, respectively.

#### GROUND-BASED

The ground-based lidars systems can be either mounted on a moving platform or vehicle or implanted at a static location. Either way, terrestrial lidar data are beneficial for applications that require high spatial and temporal resolution over a specific site.

The EOLE, multi-wavelength Mie-Raman aerosol and ozone lidar system of the Laser Remote Sensing Unit (LRSU; <u>http://lrsu.physics.ntua.gr/</u>) is equipped with a pulsed Nd:YAG laser system which emits, simultaneously, pulses at 354.93-532-1064.2 nm, with energies of 240-310-260 mJ, respectively, at 10 Hz repetition frequency. A Cassegrainian telescope of 300 mm diameter (focal length 600 mm) collects all elastically backscattered lidar signals (354.93-532-1064.2 nm), as well as those generated by the spontaneous vibrational-rotational Raman effect (by atmospheric N<sub>2</sub> at 386.6 and 607.4 nm, as well as by H<sub>2</sub>O at 407.5 nm), within a 1.5 mrad field of view. Thus, EOLE is able to provide independent and simultaneous measurements of the  $\beta_{aer}$  (at 355, 532, and 1064 nm) and  $\alpha_{aer}$  (at 355 and 532 nm), as well as the water vapor mixing ratio in the troposphere. Furthermore, EOLE provides the vertical distributions of the aerosol intensive parameters at 355 and 532nm. The full overlap of EOLE is reached at ~600-800 m asl. (Papayannis, et al., 2020).

The AIAS mobile depolarization system of the National Technical University of Athens (NTUA) in cooperation with the Biomedical Research Foundation Academy of Athens (BRFAA), uses a combination of analogue and photon-counting lidar detection signals with a 7.5 m range resolution. Specifically, a pulsed Nd:YAG laser system emits pulses at 532 nm with 10 Hz repetition frequency. A 200 mm diameter Dall-Kirkham telescope collects all elastically backscattered laser light (parallel and cross polarized at 532 nm) within a 1.5 mrad field of view. Thus, AIAS is able to provide independent and simultaneous measurements of the  $\beta_{aer}$  and  $\delta_{aer}$  parameters at 532 nm. AIAS's full overlap height is reached at 250 m above ground.

#### 1.5.3.2. BY PHYSICAL PRINCIPLE

The lidar technique offers the possibility to measure the vertical profile of a variety of atmospheric parameters based on different physical principles: temperature, pressure/density, concentration of various atmospheric gases (e.g., ozone, sulfur dioxide, methane, water vapor, etc.). Thus, lidars are classified into types according to their application. Herein, only the lidar types used for this Thesis will be presented.

#### ELASTIC (MIE) BACKSCATTER LIDARS

The elastic backscatter lidar detects the elastic (Mie) scattering of the transmitted laser beam by the atmospheric aerosols, usually at 355, 532 and 1064 nm. The elastic backscatter lidar technique uses the so-called *Klett* (Klett, 1981, 1985; Fernald, 1984) inversion method to obtain the aerosol extiction  $(a_{aer})$  and backscatter  $(\beta_{aer})$  coefficient. In this case an empirical relation for their ratio is assumed, namely the so-called lidar ratio (*LR*) (common units: sr) depending on the aerosols' type:

$$LR = \frac{a_{aer}(R,\lambda)}{\beta_{aer}(R,\lambda)} \tag{10}$$

The combination of the aerosol optical products allows the retrieval of the size-sensitive backscatter and/or extinction related Ångström Exponent (*AE*) which can be calculated as

$$AE = \left(ln\frac{X(\lambda 1)}{X(\lambda 2)}\right) / \left(ln\frac{\lambda 1}{\lambda 2}\right)$$
(11)

with *X* denoting the  $\beta_{aer}(R)$  or  $\alpha_{aer}(R)$  for a set of wavelengths,  $\lambda 1$  and  $\lambda 2$ .

These types of lidars are most frequently used to monitor the spatio-temporal evolution of aerosols emitted from different sources, either natural or anthropogenic (i.e., forest fires, desert areas, volcanoes, industrial and transport activities, etc.) and estimate the role of aerosol effects in the climate.

#### RAMAN LIDARS

Raman lidar systems detect laser light signals at the transmitted, as well as the Raman shifted (Stokes, Anti-Stokes wavelengths). The Raman scattering cross sections are several orders of magnitude smaller than those of elastic scattering (Weitkamp, 2005). Therefore, Raman lidars working with high laser pulse emitted energy, relatively large telescopes, and efficient detectors are able to perform the single-photon detection needed to capture the weak Raman signals. Figure 14 shows the atmospheric Raman spectrum for a excitation wavelength of 355 nm.

Raman backscattering from gases of known number concentration (oxygen and/or nitrogen, as their mixing ratios remains nearly constant up to the higher mesopshere) serves as an atmospheric reference. Therefore, the Raman nitrogen or oxygen signals can be used to retrieve independently the aerosol extinction and backscatter coefficients (Ansmann, et al., 1990).



Figure 14. Vibrational-rotational Raman spectra for an air composition of 78%  $N_2$ , 20%  $O_2$ , 1%  $H_2O$  and 1%  $H_2$  at 300 K for a 355 nm laser excitation (Liméry, et al., 2017).

#### POLARIZATION LIDARS

A depolarization lidar emits lineally polarized light into the atmosphere. This polarized light is scattered from the components of the atmosphere, changing its polarization state depending on the aerosols' shape. The lidar receptor unit receives the backscattered laser light in two separate channels: the parallel (with respect to the emitted light) and the cross-polarized (Figure 15).

Dividing the two received signals, the parallel and the cross-polarized one yields the particle linear depolarization ratio ( $\delta_{aer}$ ) given as:

$$\delta_{aer} = \frac{P_{||}}{P_{\perp}} = \frac{(1+\delta_m)\delta_v \frac{\beta m + \beta aer}{\beta m ol} (1+\delta_v)\delta_m}{(1+\delta_m)\frac{\beta m + \beta aer}{\beta m ol} (1+\delta_v)}$$
(12)

where  $\delta_m$  is the molecular depolarization, and  $\delta_v$  the volume depolarization ratio (Belegante, et al., 2018; Biele, et al., 2000; Freudenthaler, et al., 2009).



Figure 15. Illustration of the polarization-lidar technique (https://www.tropos.de/en/research/projects-infrastructures-technology/technology-at-tropos/remote-sensing/polarization-lidar).

Dust particles are irregularly shaped resulting in a high depolarization ratio values (Papayannis, et al., 2017; Soupiona, et al., 2020; Mylonaki, et al., 2021b). On the other hand, marine aerosols under humid conditions are rather spherical and thus, show a lower depolarization ratio (Mylonaki, et al., 2021b). Even the downward mixing of the dust particles into the marine layer is visible by an intermediate depolarization ratio. Thus, the effect of different particle shapes on the polarization state of the scattered laser light can be exploited to get an estimate of the particle's shape and type.

## 1.6. AEROSOL PROPERTIES

### **1.6.1. OPTICAL PROPERTIES**

Summarizing the main aerosol optical paramters previously discussed:

- $\beta_{aer}$  (Mm<sup>-1</sup>) is an extensive aerosol parameter which determines the strength of the backscattered lidar signal in reference to the transmitter unit of the lidar system;
- $\alpha_{aer}$  (Mm<sup>-1</sup> sr<sup>-1</sup>) is also an extensive aerosol parameter expressing how much of the transmitted laser light is scattered by the atmosphere in the backward direction, due to atmospheric scattering and absorption;
- *AE* is an extensive aerosol parameter, inverse correlated with the aerosol size: the bigger the observed aerosol, the smaller the retrieved *AE* mean value;
- *LR* (sr) is an intensive aerosol parameter which depends on the aerosol's shape, size, and chemical composition;
- the  $\delta_{aer}$  parameter provides particle's shape information.

Currently, 31 stations (Figure 16) are submitting the  $\alpha_{aer}$  and  $\beta_{aer}$  parameters to the European Aerosol Research Lidar Network (EARLINET) database, according to EARLINET's measurement schedule (one daytime and two nighttime measurements per week). Briefly, the EARLINET network (www.earlinet.org) was established in 2000, with aim to provide aerosol profiling data on a continental scale. Currently, is part of the Aerosols, Clouds, and Trace gases Research InfraStructure (ACTRIS; www.actris.eu/). During these 23 years of continuous existence, EARLINET has evolved both in the number of contributing stations, as well as in its observing capacity (Pappalardo, et al., 2014).Therefore, these systematic observations consolidate a 4D European quantitative and statistically significant aerosol survey.

Currently, the majority of the EARLINET stations (67% of the stations) operate multi-wavelength Mie-Raman lidars that combine a set of elastic and nitrogen inelastic channels. Moreover, 52% of the stations are equipped with depolarization channels, thus providing the vertical profiles of  $\delta_{aer}$  as well.



Figure 16. European Aerosol Research Lidar Network (EARLINET) lidar stations (www.earlinet.org; last update: 06/12/2019).

The Single Calculus Chain (SCC) (<u>https://scc.imaa.cnr.it/</u>) is an official EARLINET tool (D'Amico, et al., 2015; Mattis, et al., 2016). The development of this tool started in the framework of EARLINET-ASOS (European Aerosol Research Lidar Network – Advanced Sustainable Observation System); later it was extended within the ACTRIS project, and it continiously develops. The main idea behind this data processing tool is to allow all EARLINET stations to retrieve, in a fully automatic and homogenized way, the  $\beta_{aer}$  and  $\alpha_{aer}$  parameters starting from the raw lidar data.

The calculus subsystem of the SCC is composed of two modules: a pre-processor module which handles the raw lidar data and corrects them for instrumental effects and an optical processing module for the retrieval of the aerosol optical products from the pre-processed data. The two calculus modules are coordinated and synchronized by an additional module (daemon) which makes the whole analysis process fully automatic. At network level, the SCC ensures high-quality products by implementing quality checks on both raw lidar data and final optical products. Such quality checks are part of a rigorous quality assurance program developed within EARLINET. In many specific situations, it is also quite important that the retrieved products are available in real-time or in near-real time for large geographical areas (on a continental scale) (https://www.earlinet.org/index.php?id=covid-19-reports).

#### **1.6.2. MICROPHYSICAL PROPERTIES**

The main aerosol microphysical properties are: the effective radius (*reff*), the real (n) and imaginary part (k) of the refractive index (m=n+ki), the volume concentration (*Vc*) and the single scattering albedo (*SSA*). These parameters can be estimated when the three  $\beta_{aer}$  (at 355, 532 and 1064 nm) and the two  $\alpha_{aer}$  (at 355 and 532 nm) parameters, the so-called  $3\beta_{aer}+2\alpha_{aer}$  data set, are available by a Mie–Raman multiwavelength lidar system. So far, different techniques have been used to retrieve the aerosols' microphysical properties (Böckmann, 2001; Chemyakin, et al., 2014; Müller, et al., 1999; Veselovskii, et al., 2002, 2012, 2015).

In brief:

The SSA,  $\omega$ , of an individual particle is the ratio of scattering cross-section  $\sigma_{sca}$  and extinction cross-section  $\sigma_{ext}$ , which is the sum of absorption and scattering cross-sections:

$$\omega = \frac{\sigma_{sca}}{\sigma_{ext}} = \frac{\sigma_{sca}}{\sigma_{sca} + \sigma_{abs}} \tag{13}$$

34

For an ensemble of particles, the SSA becomes the ratio of scattering coefficient  $\beta_{sca}$  and extinction coefficient  $\beta_{ext}$ , which is the sum of absorption and scattering coefficients:

$$\omega = \frac{\beta_{sca}}{\beta_{ext}} = \frac{\beta_{sca}}{\beta_{sca} + \beta_{abs}} \tag{14}$$

with SSA ranging from 0 for a completely absorbing or black particle to 1 from a purely scattering or white particle.

Furthermore, particle light absorption is determined by the spatial complex refractive index distribution that forms the particle in conjunction with the complex refractive index distribution surrounding the particle. In most atmospheric applications, the refractive index surrounding the particle can be taken to be 1. The complex refractive index m can be written as:

$$m = n + ik \tag{15}$$

where *n* is the real and *k* is the imaginary part of the refractive index. A particle with a purely real refractive index scatters light but does not absorb light. The bulk absorption coefficient  $\beta_{abs\_bulk}$  of a material can be related to the imaginary part *k* of the refractive index as:

$$\beta_{abs\_bulk} = \frac{4\pi k}{\lambda} \tag{16}$$

where  $\lambda$  is the wavelength.

Finally, for optical applications, particle sizes (in  $\mu$ m) are given as the ratio of a characteristic particle dimension and the wavelength because particle optics is scale invariant, that is millimeter waves interact with millimetersized particles exactly the same way as micrometer waves with micrometer-sized particles as long as the complex refractive index and the particle shape are the same. For spherical particles, this approach utilizes the size parameter x as the ratio of particle circumference and wavelength:

$$x = \frac{2\pi r}{\lambda} \tag{17}$$

where r is the particle radius and particles are considered small compared to the wavelength if  $x \ll 1$ . For non-spherical particles either volume or surface equivalent size parameters x, (i.e., the size parameter of a sphere with either volume or surface area identical to that of the non-spherical particle) can be used.

Thus:

- the  $reff(\mu m)$  parameter represents the mean aerosol radius.
- $Vc \ (\mu m^{-3} cm^{-3})$  is an extensive aerosol parameter expressing the volume of an aerosol plume. It describes how much severe is an aerosol event. It is frequently correlated with the  $\alpha_{aer}$  parameter.
- *m* determines the amount of light scattered or absorbed. *m* has two parts: the real part (*n*), which denotes the change of light's velocity inside the scattering media (particle), and the imaginary part (*k*), which denotes the particle's absorbing capability.
- the SSA parameter is the ratio of scattering to total extinction efficiency. SSA is unitless, and a value of unity implies that all particle extinction is due to scattering; conversely, a value of zero implies that all extinction is due to absorption.

## 1.7. AEROSOL TYPING

Aerosol typing is referring to the classification of atmospheric particles based on their source region and their chemical properties. Thus, the typing can be achieved either by searching the aerosol plume's source origin (forward typing) or by comparing the aerosol intensive optical properties (i.e., *LR*, *AE* and  $\delta_{aer}$ ) against those reported in the literature (backward typing). Both techniques are described in the following paragraphs.

### 1.7.1. FORWARD TYPING

Until recently, the typing of aerosol layers observed by ground-based lidar systems was based on the combination of air-mass back-trajectory analyses, atmospheric models (i.e., DREAM), concurrent satellite products (i.e., MODIS dust and fire data), and ground-based photometric data (Balis, et al., 2003; Mylonaki, et al., 2021a,b,c; Papanikolaou, et al., 2022; Papayannis, et al., 2008; Remoundaki, et al., 2013; Soupiona, et al., 2020).

#### HYBRID SINGLE PARTICLE LAGRANGIAN INTEGRATED TRAJECTORY MODEL (HYSPLIT)

The HYSPLIT model (Stein, et al., 2015) is a complete system for computing air parcel trajectories, dispersion, chemical transformation, and deposition simulations. HYSPLIT continues to be one of the most extensively used atmospheric transport and dispersion models in the atmospheric sciences community. A common application is a back-trajectory analysis to determine the origin of air masses and establish source-receptor relationships.

The model calculation method is a hybrid one between the Lagrange approach (using a moving frame of reference for the advection and diffusion calculations as the air parcels move from their initial location) and the Eulerian methodology, which uses a fixed three-dimensional grid as a frame of reference to compute pollutant air concentrations. HYSPLIT has evolved over the last 30 years, from estimating simplified single trajectories based on radiosonde observations to a system accounting for multiple interacting pollutants transported, dispersed, and deposited over local to global scales.

#### WEATHER RESEARCH & FORECASTING MODEL (WRF)

The WRF-ARW model (Skamarock, et al., 2021) is configured with an external domain at  $12 \times 12$  km horizontal grid space and two nested domains at  $4 \times 4$  km and  $1.33 \times 1.33$  km horizontal grid space, respectively (Figure 17). The two-way nesting structure permits communicating the resolved information at the Attica Peninsula higher resolution domain towards the coarser external grids. The initial and boundary conditions for the WRF-ARW runs are the 6-hourly NCEP GFS at  $0.5^{\circ} \times 0.5^{\circ}$  horizontal grid spacing.


**Figure 17.** WRF-ARW configuration includes three two-way nested domains. The external domain is at  $12 \times 12$  km horizontal grid spacing, d02 (white rectangle) is at  $4 \times 4$  km and d03 (red rectangle) is at  $1.33 \times 1.33$  km horizontal grid spacing (Mylonaki, et al., 2023b).

#### FLEXIBLE PARTICLE DISPERSION MODEL (FLEXPART)

The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART (Stohl, et al., 2005; Brioude, et al., 2013) runs in backward mode driven by the hourly WRF-ARW meteorological fields for the identification of air mass source-receptor relationships. A similar model setup has been used in earlier studies over Athen, Greece (Solomos et al., 2015, 2019; Dimitriou et al., 2021). The high regional and temporal resolution of the meteorological driver model (WRF-ARW) allows a detailed description of the local atmospheric dynamics induced by the mountainous terrain of Attica and the air-sea interactions (e.g., sea breeze cells). In FLEXPART, 10000 tracers are released every six hours at the DEM station and their 24-hour residence time is analyzed to identify the areas of origin during each measuring period.

#### MODERATE RESOLUTION IMAGING SPECTRORADIOMETER (MODIS)

As part of NASA's Earth Observing System (EOS), MODIS is carried on both the Terra and Aqua satellites. The MODIS active fire products fall within the suite of terrestrial products and provide information about actively burning fires, including their location and timing, instantaneous radiative power, and smoldering ratio, presented at a selection of spatial and temporal scales (Giglio, et al., 2003; Justice, et al., 2002; Kaufman, et al., 2005).

An algorithm examines each pixel of the MODIS swath and ultimately assigns it to one of the following classes: *missing data, cloud, water, non-fire, fire,* or *unknown*. Pixels lacking valid data are immediately classified as missing data and excluded from further consideration. Cloud and water pixels are identified using cloud and water masks and are assigned to the classes cloud and water, respectively. The fire detection algorithm considers only those land pixels that remain.

There are two logical paths through which fire pixels can be identified. The first consists of a simple absolute threshold test. This threshold must be set sufficiently high so that it is triggered only by very unambiguous fire pixels (i.e., those with very little chance of being a false alarm). The second path consists of a series of contextual tests designed to identify the majority of active fire pixels that are less obvious.

The variable *confidence* is based on a collection of intermediate algorithm quantities used in the detection process. It is intended to help users gauge the quality of individual hotspot/fire pixels. Confidence values are set to low, nominal and high ones. Low confidence daytime fire pixels are typically associated with areas of sun glint and

lower relative temperature anomalies (<15K) in the mid-infrared channel. Nominal confidence pixels are those free of potential sun glint contamination during the day and marked by strong (>15K) temperature anomalies in either day or nighttime data. High confidence fire pixels are associated with day or nighttime saturated pixels.

#### BSC- DUST REGIONAL ATMOSPHERIC MODEL (DREAM) 8B DUST MODEL

The BSC-DREAM8b model (Basart, et al., 2012), operated by the Barcelona Supercomputer Center (BSC-CNS; https://ess.bsc.es/bsc-dust-daily-forecast, last access: 7 October 2020) provides operational forecasts since May 2009. BSC-DREAM8b is a regional model designed to simulate and predict the atmospheric cycle of mineral dust aerosols. It is one of the most widely used and evaluated models for dust studies over northern Africa and Europe (Binietoglou, et al., 2015; Kokkalis, et al., 2021; Papayannis, et al., 2012; Soupiona, et al., 2018, 2020).

The DREAM model (http://www.seevccc.rs/?p=14) is developed as add-on component of an atmospheric model and is designed to simulate and/or predict the atmospheric cycle of mineral dust aerosol. It solves the Euler-type partial differential nonlinear equation for dust mass continuity (Janjic, et al., 2001, and references thereinafter).

DREAM simulates all major processes of the atmospheric dust cycle (Nickovic, et al., 2001). During the model integration, calculation of the surface dust emission fluxes is made over the model cells declared as deserts. A viscous sub-layer parameterization regulates the amount of dust mass emission for a range of near-surface turbulent regimes. Once injected into the air, dust aerosol is driven by the atmospheric model variables: by turbulence in the early stage of the process when dust is lifted from the ground to the upper levels; by winds in the later phases of the process when dust travels away from the sources; and finally, by thermodynamic processes and rainfall of the atmospheric model and land cover features which provide wet and dry deposition of dust over the Earth's surface.

#### NMME- DUST REGIONAL ATMOSPHERIC MODEL (NMME-DREAM)

The dust transport model NMME-DREAM is based on the NCEP–NMME meteorological core (Janjic, et al., 2001) and the DREAM aerosol transport module for the description of the atmospheric life cycle of mineral dust (Nickovic, et al., 2001, 2016; Pérez, et al., 2011; Solomos, et al., 2019). The initial and boundary conditions for running the NMME-DREAM are the 6-hourly analysis provided by the National Center for Environmental Prediction Global Forecast System (NCEP GFS) at  $0.5^{\circ} \times 0.5^{\circ}$  horizontal grid spacing.

#### 1.7.1.1. SOURCE CLASSIFICATION ANALYSIS (SCAN)

SCAN (Mylonaki, et al., 2021a) is an automated aerosol layer classification process (Figure 18) independent of aerosol optical properties. SCAN uses the HYSPLIT backward trajectories created in combination with MODIS fire data to provide the possible source of air mass observed above the stations, counting the time that the air parcel spends over predefined source regions (e.g., dust, marine, continental polluted and clean continental). Specifically, an X-h HYSPLIT backward trajectory is used to calculate the amount of time that each aerosol layer travelled over predefined aerosol source regions before arriving over the observation site (*X* is the number of hours of the backward trajectory, which can is defined by the user at the beginning of the process).

As a first step, SCAN assumes specific regions (Figure 19, colored squares; from now on referred to as domains) in terms of aerosol sources (Penning De Vries, et al., 2015). The continental polluted domains represent the regions with increased anthropogenic activity according to monthly means of tropospheric NO<sub>2</sub> from GOME-2 (Georgoulias, et al., 2019). Taking into account the geographical coordinates (latitude, longitude and height) of each HYSPLIT's air-mass backward trajectory hour, SCAN implements a number of criteria (Figure 20): (i) if

the geographic coordinates of a backward trajectory's hour are within the boundaries of the marine domains and if the height of this trajectory over the domain is below 1 km (Ho, et al., 2015; Wu, et al., 2008), SCAN assigns this trajectory's hour to the marine aerosol type; (ii) if the geographical coordinates of a backward trajectory's hour are within the boundaries of the clean continental, polluted continental, or dust domains and if the height of this trajectory is below 2 km over the domain, SCAN assigns this trajectory's hour to the clean continental, polluted continental, or dust aerosol type, respectively; (iii) for an hour to be assigned to the smoke aerosol type, the coordinates of the backward trajectory at this specific hour should be within the boundaries of the clean continental or polluted continental domains, and additionally the height of the trajectory at this specific hour should be below 3 km (Amiridis, et al., 2010).



Figure 18. Principle of the Source Classification Analysis (SCAN) algorithm (Mylonaki, et al., 2021a).



Figure 19. Source Classification Analysis (SCAN)'s aerosol source type classification map. Different colored squares represent different aerosol sources: orange squares correspond to dust, blue squares to marine, brown squares to clean continental, and black squares to continental polluted aerosol sources (Mylonaki, et al., 2021a).

SCAN draws fire information from MODIS using location, time, and confidence value (in %) of actively burning fires. In particular, a hotspot is assumed to be significant if the MODIS confidence value is higher than 80 % (Amiridis, et al., 2010). In addition, one hour of the X hours of HYSPLIT air-mass backward trajectory must be in a maximum distance of 8 km away from the significant hotspot the time it is spotted in order to be assigned as of biomass burning origin.



Figure 20. Classification procedure of Source Classification Analysis (SCAN). This procedure is performed for each hour of the HYSPLIT's backward trajectory associated with each observed aerosol layer (Mylonaki, et al., 2021a).

SCAN performs the above classification process for all hours of a HYSPLIT air-mass backward trajectory, and as a final step, it counts the hours that the air parcel spends over each geographical domain. If more than one domain is involved in the backward trajectory's path, a mixture of more than one aerosol type is assumed. In case the aforementioned criteria (domain and height limitations) are not satisfied, the aerosol type is considered unknown.

The maximum number of pure aerosol types that SCAN can assign to a layer is six (Table 3), and the combination of them gives SCAN the capability to identify a great number of aerosol mixtures.

#### 1.7.2. BACKWARD TYPING

Two automated aerosol classification methods have been developed: (1) the Mahalanobis distance aerosol classification algorithm (MD) and (2) a neural network aerosol classification algorithm (NATALI) both trained to estimate the most probable aerosol type from a set of multispectral lidar data (*LR*, *AE* and  $\delta_{aer}$  if provided).

#### 1.7.2.1. MAHALANOBIS DISTANCE AEROSOL CLASSIFICATION ALGORITHM (MD)

The automatic classification algorithm described in Papagiannopoulos et al., (2018) makes use of the Mahalanobis distance function (Mahalanobis, 1936) to relate an unclassified measurement to a predefined aerosol type. Specifically, the method compares observations (mean values of intensive aerosol optical properties within the aerosol layer) to model distributions that comprise EARLINET pre-classified data (Figure 21). This objective multidimensional classification scheme has found great applicability and has been used with lidar (Burton, et al., 2012; Papagiannopoulos, et al., 2018), space-based polarimetry (Russell, et al., 2014), and spectral photometry (Hamill, et al., 2020; Siomos, et al., 2020) data.



**Figure 21.** Colored pre-specified classes and 90%-confidence ellipses for 8 aerosol classes used within Mahalanobis aerosol classification algorithm. The error bars correspond to the standard deviation of the selected mean intensive properties. CC stands for clean continental, D stands for dust, MD stands for mixed dust, MM stands for mixed marine, PD stands for polluted dust, PC stands for polluted continental, S stands for smoke, and V stands for volcanic particles (Papagiannopoulos, et al., 2018).

In brief, the MD algorithm is able to classify an aerosol layer in one of eight at maximum (dust, volcanic, mixed dust, polluted dust, clean continental, mixed marine, polluted continental, and smoke) down to a minimum of four (dust/volcanic/mixed dust/polluted dust, mixed marine, smoke/polluted continental, and clean continental) classes depending on the lidar system configuration (Table 3).

#### 1.7.2.2. NEURAL NETWORK AEROSOL CLASSIFICATION ALGORITHM (NATALI)

NATALI (Nicolae, et al., 2018a,b) is an automated, optical-property dependent aerosol layer classification algorithm which makes use of the aerosol parameters [ $3\beta_{aer}+2\alpha_{aer}+\delta_{aer}$  if provided] retrieved directly from the EARLINET database to characterize the aerosol layers.

Specifically, the training of the artificial neutral network (ANN) has been performed using a synthetic database developed by Koepke et al. (2015) along with the T-matrix numerical method (Mishchenko, et al., 1996; Waterman, 1971) to iteratively compute the intensive optical properties of six pure aerosol types (the first six aerosol types in Table 3) presented to the ANNs to perform the typing. The aerosol mixtures are obtained through a linear combination of pure aerosol properties.

Three classification schemes are used with different aerosol type (classification) resolutions (Figure 22). First, when the  $\delta_{aer}$  parameter is available and all aerosol optical parameters are provided with a high-quality (uncertainty of the  $\alpha_{aer} \leq 50\%$ , uncertainty of the  $\beta_{aer} \leq 20\%$ , uncertainty of the  $\delta_{aer} \leq 30\%$ ), the typing is performed in high resolution (AH) mode. This means that the mixtures can be resolved and the number of output types is 14 (Table 3). In the second scheme, the values of the aerosol optical parameters have high uncertainty (uncertainty of  $\alpha_{aer} > 50\%$ , uncertainty of  $\beta_{aer} > 20\%$ , uncertainty of the  $\delta_{aer} > 30\%$ ), and the typing is performed in the low-resolution (AL) mode. In this case, the number of output types is limited to six (first six aerosol types; Table 3). There is, also, the capability to perform the aerosol typing when the  $\delta_{aer}$  is not available, knowing that the aerosol mixtures cannot be resolved, so only the predominant aerosol type is retrieved. A voting procedure selects the most probable answer out of the three (possibly different) individual returns. The correct answer is selected based on a statistical approach considering two criteria: (i) which answer has a higher confidence and (ii) which answer is more stable over the uncertainty range (i.e., the percentage of agreement for values between error limits).



Figure 22. Schematics of the neural network aerosol classification algorithm (NATALI) for aerosol typing (Nicolae, et al., 2018).

## 1.8. AEROSOL DOSIMETRY MODELS

In the chain "Exposure-Dose-Response", "dose" is defined as the amount of aerosols deposited in the lung. To accurately assess the health effects on humans, the "response" parameter is of uttermost importance to predict lung deposition in the various regions of the RT.

So far, various modeling and computation techniques have been developed to predict the deposition patterns of inhaled aerosol particles in the human RT. The dosimetry models are categorized into separate groups, differing, in general, on the lung morphology (compartment, trumpet, symmetrical, a-symmetrical, simple or multiple path) and the applied computational techniques (empirical, semi-empirical, mechanistic and stochastic mathematical expressions and computational flow and particle dynamics computations) (Hofmann, 1982; Koblinger & Hofmann, 1990; Anjilvel and Asgharian, 1995; Mitsakou, et al., 2005, 2007; Choi & Kim, 2007; Chalvatzaki & Lazaridis, 2015; Miller, et al., 2016). In the following paragraphs, we present the three dosimetry models used in this study.

#### 1.8.1. MULTIPLE-PATH PARTICLE DOSIMETRY MODEL (MPPD)

The Eulerian Multiple-Path Particle Dosimetry model (MPPD V2.11, ARA Inc.) (Anjilvel and Asgharian, 1995) is a semi-empirical, deterministic, asymmetric generation or "multiple-path" model allowing for the calculation of aerosol deposition, in various human respiratory compartments, under different exposure conditions, airway morphometry and particle properties. The latest improvements and additions to this dosimetry model can be found in Miller et al. (2016). When compared to four other different deposition models [semi-empirical (ICRP, 1994), trumpet (Choi and Kim, 2007), single path (Hofmann, 1982) and stochastic (Koblinger and Hofmann, 1990)] the differences between the calculated dose rates lied within a range of about 10% (Hofmann, 2011).

#### 1.8.2. EXPOSURE DOSE MODEL 2 (EXDOM2)

The Exposure Dose Model 2 (ExDoM2) (Chalvatzaki and Lazaridis, 2015) is a semi-empirical, regional compartment model, able to calculate the human exposure and the deposition, dose, clearance, and retention of aerosol particles in the respiratory tract at specific times during and after exposure, under variable exposure

conditions. It is a revised version of ExDoM (Aleksandropoulou and Lazaridis, 2013), where new material/data from (Vañó, et al., 2017) and a Physiologically-Based Pharmaco-Kinetic (PBPK) modules for specific metals were incorporated. Compared to other models (Aleksandropoulou and Lazaridis, 2013), the total lung deposition fraction discrepancies ranged from 0.15% for total deposition, up to 20.5% for regional deposition in the human RT.

## 1.8.3. PARTICLE TRANSPORT AND DEPOSITION MODEL AND LUNG CLEARANCE/RETENTION MODEL (RETRAC)

RETRAC is a mechanistic numerical model that describes aerosol dynamics and is used to determine particle deposition in the human respiratory tract. The model predicts the temporal variation of particle concentration and the regional deposition of inhaled particles during a breathing cycle by solving the aerosol general dynamic equation (GDE) considering breathing dynamics. The GDE is considered in a one-dimensional form and describes the different external (convection, axial diffusion, deposition) and internal (growth, coagulation) processes acting simultaneously on the inhaled particle population. Standard theory is used for the description of the above aerosol processes. The thoracic (lung) region of the respiratory tract is described with the help of the classical morphometric model "A" by Weibel (1963), according to which the volume of the alveolated section of the lung is left to vary with time to accommodate effects due to breathing dynamics. The air velocity along the airways of the respiratory tract is determined by solving the equation potential can be found in literature (Mitsakou, et al., 2005, 2007; Pilou, et al., 2015, 2020; Almeida-Silva, et al., 2018; Faria, et al., 2022).

#### 1.9. OXIDATIVE POTENTIAL ANALYSIS

The oxidative stress is a potential mechanism which occur when the body's antioxidant capacity cannot counteract or detoxify harmful effects of ROS due to an excess presence of ROS (Pizzino, et al., 2017). ROS are introduced to the human body through inhalation of PM either directly of with particle-bounded ROS and/or through catalytic generation of ROS in vivo after inhaling redox-active PM species (Pryor, et al., 2001).

A simplified, but of high analytical precision, approach of the original dithiothreitol assay (DTT) protocol (Cho, et al., 2005) is that of Fang et al. (2015). Concisely, DTT assay simulates the electron-transfer mechanism based on the catalytic ability of redox-active species to transfer electrons from DTT to oxygen, and thus DTT can be considered as a surrogate measure of the in vivo capacity of PM to induce ROS. The optimization of the manual and time consuming method is achieved by using a semi-automated DTT system, equipped with two programmable syringe pumps, an autosampler a liquid waveguide capillary cell (LWCC) and an online spectrophotometer, which is available at the Institute of Chemical Engineering Sciences (FORTH/ICE-HT) in Patras, Greece. This system is a replicate of the original one developed, at Georgia Institute of Technology in Atlanta, USA, in 2015, for conducting semi-automatically the DTT assay and quantifying the OP of ambient particles in aqueous extracts (Fang, et al., 2015).

# CHAPTER 2. METHODOLOGY

In this Chapter (Chapter 2) we present the methodology followed to complete the 5 studies composing this Ph.D. Thesis.

## 2.1. COMPARISON OF THE DIFFERENT AEROSOL TYPING TECHNIQUES OVER 4 EARLINET STATIONS

In this 1<sup>st</sup> study, SCAN, MD and NATALI were used to characterize cloud-free and free-tropospheric aerosol layers observed by Raman multi-wavelength and depolarization lidar systems over Europe. The results were compared to assess their strengths and limitations.

The lidar station selection depended on the availability of the  $\beta_{aer}$ ,  $\alpha_{aer}$  and  $\delta_{aer,532}$  in the EARLINET database within the years 2015-2018. The selected EARLINET lidar site information is presented in Table 2 and their geographical location in Figure 22.

Location	ACTRIS Code	Institute	Coordinates (lat, long, altitude amsl)	Reference	No of layers	Year
Bucharest	INO	National Institute of R&D for Optoelectronics (INOE) <u>Link</u>	44.35°N, 26.03°E, 93 m	(Nemuc, et al., 2013)	7	2017
Kuopio	KUO	Finnish Meteorological Institute (FMI), Atmospheric Research Centre of Eastern Finland, Kuopio <u>Link</u>	62.74°N, 27.54°E, 190 m	(Althausen, et al., 2009; Engelmann, et al., 2016)	9	2015, 2016
Leipzig	LEI	Leibniz Institute for Tropospheric Research, Leipzig <u>Link</u>	51.35°N, 12.43°E, 90 m	(Althausen, et al., 2009; Engelmann, et al., 2016)	17	2018
Potenza	РОТ	Consiglio Nazionale delle Ricerche - Istituto di Metodologie per l'Analisi Ambientale (CNR- IMAA), Potenza <u>Link</u>	40.60 N, 15.72 E, 760 m	(Madonna, et al., 2011)	64	2015- 2016

**Table 2.** European aerosol research lidar network (EARLINET) lidar site information selected for the comparison of different typing techniques (Mylonaki, et al., 2021a).

In this study 48 dates were studied: 4 dates of Bucharest site in 2017, 8 of Kuopio site in 2015-2016, 7 of Leipzig site in 2018 and 31 of Potenza site in 2015-2017. For some dates, more than one aerosol layer was observed increasing the number of layers to 97 (Table 12). The aerosol layers' geometrical properties are presented in Figure 23. The different coloring line coloring refer to different EARLINET lidar station.



Figure 23. Geometrical properties of the aerosol layers observed over the four European Aerosol Research Lidar Network (EARLINET) stations and used for the comparison of different typing techniques (Mylonaki, et al., 2021a).

Depending on these geometrical properties and the mean observation height of each aerosol layer (Table 13), the HYSPLIT backward trajectories were retrieved (Figure 24) to be used for the aerosol typing. Same as above, the different line coloring in Figure 24 refers to different EARLINET lidar station. In particular, the red, blue, green and black lines correspond to HYSPLIT backward trajectories ending over Kuopio, Potenza, Bucharest and Leipzig, respectively.



Figure 24. HYSPLIT 6-days (144 hours) backward trajectories arriving over Potenza (blue lines), Bucharest (green lines), Kuopio (red lines), Leipzig (black lines) lidar sites selected for the comparison of different typing techniques (Mylonaki, et al., 2021a).

Afterwards, SCAN used the retrieved HYSPLIT backward trajectories in combination with MODIS satellite fire data and a number of criteria to identify the aerosol layers' possible source. At the same time, the aerosol layers were also classified by NATALI and MD using the full set of aerosol optical properties (including  $\delta_{aer}$ ). In this way, the typing results from the three different aerosol typing schemes were compared and the mean optical properties of the aerosol types observed over Europe were also provided.

However, despite the extensive lidar dataset studied here, this study focused mainly on EARLINET lidar stations of the central and southern continental Europe, as can be seen in Figure 25, affected mainly by continental polluted aerosols. Specifically, Romania is a crossroad of air masses arriving from different regions (Greece, Ukraine, Russia, Saharan desert, etc.) and is affected, episodically, by strong biomass burning events (Amiridis, et al., 2010). Futhermore, at the lidar site at Leipzig (52°N, 12°E, 90 m above sea level (asl), 0.5 million citizens) in central Europe air masses from the polluted, highly industrialized and densely populated western European region as well as from rural and heavily polluted areas in the former East Block states are frequently observed. On the other hand, Kuopio (population 91.000) is the principal town of the province of northern Savo, in the eastern part of central Finland, 330 km northeast from Helsinki, the capital of Finland (Figure 25). The most significant aerosol local sources are traffic on highways, especially between Kuopio and Siilinjärvi with approximately 30.000 vehicles/day, the local traffic in Kuopio, and point sources, such as a district heating plant 3 km south of Puijo and a pulp mill 5 km north-east of Puijo (Leskinen, et al., 2009). Finally, CIAO, the most advanced infrastructure for ground based remote sensing in Italy (Mona, et al., 2014), is located in Tito Scalo, Potenza, Southern Italy, on the Apennine mountains (40.60°N, 15.72°E, 760 m asl.), less than 150 km from the West, South and East coasts (Figure 25), thus, frequently affected by dust intrusions (Mona, et al., 2014; Soupiona, et al., 2020). In this way, this study did not provide information concerning the aerosol mixtures observed over typical Mediterannean sites. Thus, in the following (2<sup>nd</sup> and 3<sup>rd</sup>) studies we tried to assess this issue.



Figure 25. Geographical location of the four European aerosol research lidar network (EARLINET) stations (yellow diamonds) selected for the comparison of different typing techniques (Mylonaki, et al., 2021a).

### 2.2. AEROSOL TYPING OVER ATHENS, GREECE

In the frame of this (2<sup>nd</sup>) study, the lidar measurements were conducted at the National Technical University of Athens, Zografou campus (NTUA; 37.96°N, 23.78°E, elevation 220 m asl.; Figure 26a), a semi-urban area at the foot of Mount Hymettus, about 8 km northeast of Athens' city center, using the ground-based EOLE, multi-wavelength Mie-Raman aerosol and ozone lidar system (Figure 26b; Papayannis, et al., 2020) of the Laser Remote Sensing Unit (LRSU; <u>http://lrsu.physics.ntua.gr/</u>). During the day, the site is exposed to air masses overpassing the urban area of Athens under most meteorological conditions, while it is, partially, influenced by incoming long-range transported aerosols under northern or southern winds (Eleftheriadis, et al., 2021; Kokkalis, et al., 2021; Mylonaki, et al., 2021b; Soupiona, et al., 2018). The EOLE lidar system performs systematic lidar measurements according to the EARLINET protocol (Pappalardo, et al., 2014), twice per week, every Monday and Thursday, except on rainy days, during the time period 2011-2019.



**Figure 26.** a) Map of the Greater Athens area (GAA) showing the locations of the National Technical University of Athens (NTUA) lidar site (37.96°N, 23.78°E, 220 m asl.; red pin; Googgle maps); b) the ground-based EOLE lidar system located at NTUA, Athens, Greece (credits to A. Papayannis) (Mylonaki, et al., 2021b).

This study was focused on cloud-free and free-tropospheric aerosol layers. Regarding the geometrical identification of these layers, we relied on a new method presented by Maroufidis et al. (2020). This method is based on a three-step process algorithm. Firstly, a pre-processing part calculates the range corrected signal (RCS) from the raw lidar signal. A detection part follows distinguishing the aerosol/cloud layers from background radiation using intensity and temporal empirical thresholds. The final step of the algorithm is the segmentation part. Three categories of layers are defined: 1) free-tropospheric aerosol layers, 2) free-tropospheric aerosol layers partially mixed with the PBL and 3) aerosol layers inside the PBL. The 1<sup>st</sup> are easily separated using morphological signal analysis filters. For the 2<sup>nd</sup> kind, a variation of the watershed segmentation disconnects the aerosol layers which are only partially mixed with the PBL. As a last step, for the aerosol layers inside the PBL, the histogram-based multi-Otsu's signal analysis method (with predefined or manual-selected number of classes; Otsu, et al., 1979) is used to further separate the aerosol layers. In this way, this method permits the efficient separation of different aerosol layers using the raw lidar signal. The results of the geometrical identification of the aerosol layers studied in this study are presented in Table 14 (for more than 600 aerosol layers).

In order to perform the aerosol typing, we then collected the necessary input data for the SCAN aerosol typing algorithm, using the HYSPLIT and MODIS files. More specifically, the aforementioned geometrical characteristics of the observed aerosol layers were used for the HYSPLIT file retrievals. Then, as collocated satellite measurements of the burnt areas, we used the MODIS Burnt Area product for the time period of the 8-day air mass backward trajectories starting from the day of each observation. Additionally, the BSC-DREAM8b dust model was synergistically implemented to effectively determine the dust aerosol load over the Athens lidar site.

Afterwards, the lidar data processing was performed by the SCC automatic lidar data calculator. The lidar signals were averaged over a 60 s time period considering stable atmospheric conditions, as much as possible. The atmospheric stability was validated through the observation of the spatio-temporal evolution of the RCS lidar signals. Regarding the *LR* value used for calculating the elastic  $\beta_{aer}$  at 1064 nm, we assumed a constant value according to Kletts method (Klett, 1981, 1985). In fact, the *LR* value can vary greatly depending on the shape and size of the backscattering particles and, therefore, on the aerosol mixing processes (Papayannis, et al., 2008, 2017). In this study, the smoke and mixed dust category were expected to have optical properties intermediate to those presented by the dust and smoke and/or urban pollution aerosols and/or marine with *LR* values in the range 30-71 sr (Groß, et al., 2011). For this reason, in this study, a *LR* mean value of 50±15 sr was assumed. At the same time, the continental polluted mixed with marine aerosols category is expected to have optical

properties intermediate to those presented by marine and continental polluted aerosols, thus the relevant *LR* parameter may vary in the range 35-50 sr (Burton, et al., 2013; Müller, et al., 2007). Therefore, for this category a *LR* value of  $50\pm15$  sr was assumed.

Likewise, the dust mixtures category is expected to have optical properties intermediate to those presented by dust and smoke or/and continental polluted aerosols, with *LR* values in the range of 30-71 sr (Groß, et al., 2011; Sicard, et al., 2016). For this reason in this study, a *LR* value of  $50\pm15$  sr was assumed for this category. The smoke *LR* value may also vary greatly in the range 26-93 sr (Groß, et al., 2013; Müller, et al., 2005) depending on the aerosol ageing. For the long-range transport of smoke aerosols, a constant *LR* value equal to  $60\pm15$  sr was assumed. Finally, for the smoke and continental polluted category a *LR* value of  $60\pm15$  sr was assumed according to Groß et al. (2013) and Burton et al. (2013) who reported urban *LR* values in the range 33-72 sr. The calculation of  $\alpha_{aer}$  and  $\beta_{aer}$  parameters at 355 nm and 532 nm for the nighttime measurements was performed independently by the Raman technique.

Finally, from the large lidar dataset, only the lidar data containing smoke aerosol layers (and their mixtures) were selected and used for further microphysical analysis (Table 15). The regularization algorithm (Veselovskii, et al., 2002) was used to invert the aerosol optical properties into the microphysical ones. As the smoke particles are rather small, the effects related to the particle non-sphericity were not considered and the inversion was made taking into consideration the assumption of a spherical particle shape. The boundary of the inversion window was set to minimum and maximum particle radii of 0.05 and 10  $\mu$ m, respectively. The *n* was allowed to vary in the range 1.35-1.65, while the *k* varied in the range 0-0.02.

## 2.3. AEROSOL TYPING OVER VOLOS, GREECE

However, the previous study did not provide the depolarization information regarding the aerosol layers observed over a typical Mediterannean site, which was the motivation for our  $3^{rd}$  study.

The 3<sup>rd</sup> study was carried out in the frame of the PANACEA project (<u>https://panacea-ri.gr/</u>), conceived to monitor the atmospheric composition, solar radiation variations, climate change and related natural hazards in Greece, implementing a synergy of a high number of equipment. PANACEA targets at providing state-of-the-art science expertise on issues such as air quality and long-range transport of pollutants, acting as a reference point for environmental disaster management in Greece, to support effective decision making by national/regional/local authorities and render tailored services to the public and private sector. Finally, it acts as a validation/calibration and reference point for specialized networks for air quality monitoring.

Within this context, the lidar measurements for this study were performed at the site of Volos during the PANACEA summer campaign in July 2019. The typical measurement time was set as 11:30-23:30 UTC with a 2-h break at noon (15:00-17:00 UTC), enabling both morning and night session measurements. The AIAS mobile depolarization system (Figure 27b) operation site close to the sea (Figure 27a) enabled the aerosol vertical distributions for heights above 250 m asl..

Similarly to the previous study, in this study we firstly used the aerosol layer segmentation method (Maroufidis, et al., 2020) previously described for the geometrical identification of the aerosol layers observed over Volos. The results are presented in Table 16 (42 aerosol layers). We then used SCAN to classify the aforementioned aerosol layers. The variable *confidence* of the fire product was taken under consideration to have a better estimation of the possible burnt areas, and only the fire dots with confidence level higher than 50% were used. Furthermore, to successfully determine the dust aerosol load over Volos, the BSC-DREAM8b dust model was

additionally used. Finally, the lidar data processing was performed by the SCC automated lidar data processor as discussed in the previous Section (Section 2.2).



Figure 27. a) Panhellenic Infrastructure for Atmospheric Composition and Climate Change Project (PANACEA) measurement site location of Volos (39.21°N, 22.57°E); b) the AIAS mobile depolarization system (Mylonaki, et al., 2021c).

In this way, we provided a comprehensive dataset of intensive optical properties (LR at 355 and 532 nm, AE extinction- and backscatter-related and  $\delta_{aer}$  at 532 nm) associated with the most characteristic aerosol types observed over Europe including the Mediterannean region.

#### 2.4. AEROSOL RADIATIVE EFFECT ASSESSMENT

As a step forward (4<sup>th</sup> study), we used the Libradtran package and the daytime lidar measurements performed by the EOLE lidar system of NTUA to assess the effects of the most characteristic aerosol types and mixtures observed over Athens, Greece, within the time period 2014-2019.

In particular, we used the  $LR_{532}$  value of each aerosol type provided by our 2<sup>nd</sup> study (Table 18) and multiplied it by the  $\beta_{aer}$  at 532 nm of each aerosol layer observed over Athens for the daytime lidar measurements as characterized in Section 2.2, to retrieve the vertical profile of  $\alpha_{aer}$  at 532 nm. A total of 62 free-tropospheric aerosol layers were studied representing five different aerosol types (Table 19).

At the same time, the Libradtran package was used to retrieve the DRE and HR of a thick wildfire smoke aerosol layer captured by the CALIPSO overpass (L2 version 4.21) approximately 119 km northern of Athens in the 8<sup>th</sup> of August 2021 (Figure 27), during the extreme and long-lasting wildfires in Greece (3-18 August 2021) on the northern boarders of the Attika peninsula and Evia island. Specifically, devastating forest fires occurred on the northern borders of the Attika peninsula and at the north of Evia island in August 3rd, 2021, emitting a huge amount of biomass burning aerosols. Continuous resurgences and outbreaks of the fires, together with the regional meteorological conditions, resulted in maintaining the biomass burning aerosols over the area for several days. In Figure 29 we present the extend of these wildfires as captured by Copernicus EMS rapid mapping activations in the 9 of August 2021. Within 6 days (3-9 August) 560 km<sup>2</sup> of land have been burnt only in Attika and Evia, let alone the other part of the country, which is just a bit less than the area of the Crete island. Landsat satellite captured the smoke and burned area of Evia island in 10 of August 2021 (Figure 30). Here, a *SSA*<sub>532</sub> value of 0.96 was assumed for fresh smoke aerosols according to De Rosa et al. (2022).



**Figure 28.** (Right) CALIPSO overpass over Greece in 8 of August 2021, 01:15:10 UTC; (Left) CALIPSO aerosol classification for the CALIPSO overpass of 8 August 2021 (01:15:10 UTC). The coordinates of our interest lie within the range 41.25°N-35.18°N latitude, 23.42°E-21.56°E longitude (Mylonaki, et al., 2023a).



Figure 29. Burnt areas (red areas) detected by Copernicus EMS Rapid Mapping Activations (as of 9 August 2021) showing the extend of the Greece's wildfires in August 2021 (source: <u>https://erccportal.jrc.ec.europa.eu/ercmaps/ECDM\_20210810\_Greece\_Forest-fires(1).pdf)</u>.



Figure 30. OLI Landsat true false of Evia 2021) and colors views of the north end (10 August (https://landsat.visibleearth.nasa.gov/view.php?id=148682).

## 2.5. AEROSOL HUMAN HEALTH RISK ASSESSMENT

The 5<sup>th</sup> and last study implemented in the frame of this Thesis refers to the same time period (1st half of August 2021), when the devastating forest fires occurred on the northern borders of the Attika peninsula and at the north

of Evia island after a historic and long-lasting heatwave that occurred on 26 July-10 August 2021 when dust aerosols were transported from north Africa towards Athens and were mixed with biomass-burning aerosols from the wildfires. However, this study was focused on assessing the possible health risks from inhaling the smoke and dust aerosols by providing the aerosols' oxidative potential, exposure and dose.

To do so we used the NMME-DREAM and the FLEXPART-WRF model to track the transport of dust from the Sahara towards Italy and Greece and of smoke from the wildfires towards the Demokritos station (DEM station, located at  $37.99^{\circ}$ N,  $23.82^{\circ}$ E, 275 m asl.), where in situ aerosol measurements were carried out. Specifically, daily PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> filter samples were collected using sequential gravimetric samplers (Leckel SEQ47/50) equipped with PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> inlets, respectively. The samplers were operated at a flow rate of  $2.3 \text{ m}^3$ /h. The samples were collected on Polytetrafluoroethylene (PTFE) 47 mm membrane filters. The PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> mass concentrations were determined by gravimetric analysis using a Sartorius BP 211D electronic microbalances with maximum attainable precision of 1 µg. The filters were equilibrated in the weighing room for at least 48 hours before weighing at conditions of relative humidity (R.H.) of 45%-50%, and temperature of 20±1 °C. Both sampling and gravimetric analysis were performed following the European Standard EN12341. These filters were further analyzed for the aerosol OP to be determined.

In this study the water-soluble oxidative potential (WS-OP) of the redox-active components of the PM was estimated based on the DDT approach. A detailed explanation about the methodology of the OP measurement and the pre-treatment of the PM samples can be found in Paraskevopoulou et al. (2019). Briefly, punches of the collected samples were extracted with nanopure water, through ultrasonication, and filtration of the extracts was occurred using PTFE syringe filters prior to the analysis (coefficient of variation, CV = 4%). Subsequently, incubation of the antioxidant DTT in the aqueous extracts took place under controlled conditions (T= $37 \text{ }^{\circ}\text{C}$  and pH=7.4). The rate of DTT oxidation, commonly defined as DTT activity, was proportional to the concentration of ROS in the aqueous extracts and was determined by measuring the consumption of DTT at specific time intervals of 4, 13, 23, 30 and 41 min. The remaining amount of DTT in the samples was quantified by adding DTNB reagent (5,5-Dithioben (2-nitrobenzoic acid) which forms the light absorbing derivative 2-nitrobenzoic acid (TNB), that was detected by spectrophotometer. Finally, all reported data were blank corrected and the DTT consumption rates were expressed either in nmol min<sup>-1</sup> m<sup>-3</sup> (volume normalized DTT activity-DTTv), taking into consideration the sampling air flow of the analyzed  $PM_{2.5}$  samples (Fang, et al., 2015) or in nmol min<sup>-1</sup> µg<sup>-1</sup> (mass normalized DTT activity-DTTm) representing the source-related intrinsic property of particles. Worth to note that for the precision control of the semi-automated system, a phenanthrequinone (PQN) solution was used as an external standard, for each analyzed sequence (a total of 12 aerosol samples in every sequence).

Furthermore, the particle number size distributions, ranging from 250 nm to 10 µm optical diameter, were measured with a time resolution of 1 min by an optical particle counter (OPC) (Grimm 107 model) equipped with a laser working at 660 nm. The OPC has been calibrated at the custom-made experimental facility at METAS (Federal Institute of Metrology METAS, Particles and Aerosols Laboratory). Its size-dependent counting efficiency was determined using PSL spheres with different particle sizes ranging from 300 to 5000 nm (Vasilatou, et al., 2020). The particle number concentration in each size bin was adjusted based on the size-dependent counting efficiency of the OPC. The OPC was also corrected for sizing error by applying a constant amplitude factor based on experiments with PSL spheres, as Vratolis et al. (2018) suggested. Then, the volume size distribution was calculated in the respective size range. In addition, the particle number size distribution of atmospheric aerosol between 10 to 550 nm (electrical mobility diameter) is also measured (5 min time resolution) by a Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) including a TSI Model 3080L electrostatic classifier (TSI Inc., USA) and a Condensation Particle Counter (3772 CPC, TSI Inc., USA). By combining the electrical mobility

and optical diameters, the size distributions in size range between 10 nm and 10  $\mu$ m can be obtained by finding an optimal refractive index (Vratolis, et al., 2018).

Additionally, a thermal-optical EC/OC analyzer (Lab OC-EC Aerosol Analyzer model, Sunset Laboratory Inc.) was used to measure the concentrations of OC and EC in size ranges up to 2.5  $\mu$ m (aerodynamic diameter) with a time resolution of 3 hours. The EC measurements' repeatability and reproducibility relative standard deviations were 15 and 20%, respectively (Panteliadis, et al., 2015). For the dosimetry analysis to be performed, we assumed that OC and EC were internally mixed and that their 3hr averaged mass size distributions were similar to the respective 3-hr averaged PM<sub>2.5</sub> mass size distributions as calculated from OPC number size distributions.

As a last step in this study, 3 different aerosol dosimetry models (MPPD, ExDoM2 and RETRAC) were employed to calculate the total and regional doses in the RT over time for an adult male under light physical excitation outdoors. The following exposure scenario was considered for MPPD simulations: upright body orientation, nasal breathing, functional reserve capacity of 3300 ml, upper respiratory tract volume of 50 ml at a fixed tidal volume of 1250 ml, an inspiratory fraction of 0.5 and respiration frequency of 20 breaths/min, as recommended (ICRP, 1994) for an adult male under the typified conditions of light exercise. The modal parameters (Mass Median Aerodynamic Diameter, Geometric Standard Deviation) of the mass size distribution were also calculated using multi-modal analysis (Gini, et al., 2022) and used as input values to describe aerosol properties, whereas a mean density equal to  $1.76 \text{ g cm}^{-3}$  was applied for the dosimetry calculations. In addition, a hygroscopic particle growth methodology ( $\kappa$ -Köhler theory) was incorporated into ExDoM2 for taking into consideration the hygroscopicity of particles (Chalvatzaki, et al., 2018). Finally, results for RETRAC simulations were obtained both considering and neglecting particle growth.

## CHAPTER 3. RESULTS & DISCUSSION

# 3.1. Comparison of the Three Aerosol Typing Techniques

Table 3 presents the correspondence between the generally used aerosol type names and how these are defined by the 3 aerosol classification algorithms.

Table 3. Correspondence between the aerosol types, shorthand, and actual aerosol types defined by the Neural Network Aerosol Classification Algorithm (NATALI), Mahalanobis Distance aerosol classification algorithm (MD), and Source Classification Analysis (SCAN) aerosol classification algorithms (Mylonaki, et al., 2021a).

Aerosol types	NATALI	MD	SCAN	
Continental (cc)	Continental	Continental	Clean Continental	
Continental Polluted (cp)	Continental polluted	Continental polluted	Continental polluted	
Smoke (s)	Smoke	Smoke	Smoke	
Dust (d)	Dust	Dust	Dust	
Marine (m)	Marine	Marine	Marine	
Continental and dust (cp+d)	Continental dust	Dust polluted	Continental and dust	
Dust and marine (d+m)	Marine mineral	Mixed dust	Dust and marine	
Continental and smoke (cp+s)	Continental smoke	-	Continental polluted and smoke	
Dust and smoke (d+s)	Dust polluted	Dust polluted	Dust and smoke	
Continental and marine (cc+m)	Coastal	-	Clean continental and marine	
Continental polluted and marine (cp+m)	Coastal polluted	-	Continental polluted and marine	
Continental polluted and clean continental (cp+cc)	-	-	Continental polluted and clean continental	
Continental and dust and marine (cc+d+m)	Mixed dust	-	Clean continental and dust and marine	

Aerosol types	NATALI	MD	SCAN
Continental and smoke and marine (cc+s+m)	Mixed smoke	-	Clean continental and smoke and marine
Continental polluted and smoke and marine (cp+s+m)	-	-	Continental polluted and smoke and marine
Continental and smoke and dust (cp+s+d)	-	-	Continental and smoke and dust
Continental and clean continental and marine (cp+cc+m)	-	-	Continental and clean continental and marine

In the frame of this (1<sup>st</sup>) study, 97 free-tropospheric aerosol layers were classified by the 3 classification algorithms. The results were separated into categories as follows: the *1 type* (Figure 31; blue) and *mixture* (Figure 31; cyan) categories represent the aerosol layers consisting of one and two or more aerosol types, respectively. The *other* category (Figure 31; green) consists of the cases that NATALI marked as *aerosol type/cloud-contaminated* (i.e., marine/cc), and finally, the *unknown* category (Figure 31; yellow) consists of the cases of which the classification was not possible.



Figure 31. Typing performance of a) the neural network aerosol classification algorithm (NATALI), b) the Mahalanobis distance aerosol classification algorithm (MD), and c) the source classification analysis (SCAN). The '1 type' (blue) and 'mixture' (cyan) categories represent the aerosol layers that consist of one and two or more aerosol types, respectively. The 'other' category (green) consists of cases that NATALI marked as aerosol type/cloud-contaminated (i.e., marine/cc), and finally, the 'unknown' category (yellow) consists of the cases of which the classification was not possible (Mylonaki, et al., 2021a).

It can be concluded that NATALI (Figure 31a) was able to classify the highest number of cases (96%), while MD (Figure 31b) failed to classify the highest number of cases (46%) with a lower percentage of aerosols classified as *mixture* (5%). This is a reasonable outcome given that the MD scheme considers only two aerosol mixtures, while NATALI and SCAN have many more (9 and 6<sup>6</sup>, respectively). Furthermore, the SCAN algorithm (Figure 31c) classified 37% of the aerosol layers (36 layers) as *1 type*, 30% (29 layers) as *mixture*, and 32% (32 layers) as *unknown*. Regarding these SCAN's *unknown* cases, it was assumed that the air mass traveled without being affected by any aerosol source as a result of the combination of the height and domain limitations, criteria that SCAN take into account during its typing process.

The one-by-one comparison of the three typing algorithms is presented in Figure 32 referring to the pairs (a) NATALI and MD, (b) MD and SCAN, and (c) SCAN and NATALI. The number of aerosol layers classified, as indicated by the row i and the column j, is given inside each (i,j) square. For example, the number of aerosol

layers classified as being *1 type* by MD but as *mixture* by SCAN is shown inside the *1 type-mixture* square (there are 16 such cases for this example in Figure 32b).

In general, the 45 MD's *unknown* cases were classified as *1 type* (20 cases), *mixture* (5 cases), or *other* (17 cases) by NATAL (Figure 32a). Likewise, the same cases were classified as *1 type* (12 cases) or *mixture* (13 cases) by SCAN (Figure 32b). Furthermore, MD was unable to discriminate the different aerosol types inside the *other* category of NATALI classification results (Figure 32a) and the *mixture* category according to SCAN (Figure 32b), labeling them as *1 type*. Concerning the 29 SCAN's *unknown* cases, 20 of them were also marked *unknown* by MD (Figure 32b), and they were almost equally separated into *1 type* (12 cases) and *other* (16 cases) by NATALI (Figure 32c). To effectively comment on these typing differences we present a one-by-one comparison of the typing results this time for the pairs NATALI-MD, MD-SCAN and SCAN-NATALI separately, in Figure 33, Figure 34 and Figure 35, respectively.



**Figure 32.** One-by-one comparison of the aerosol typing results between the pairs a) neural network aerosol classification algorithm (NATALI) and Mahalanobis distance aerosol classification algorithm (MD), b) MD and source classification analysis (SCAN) and c) SCAN and NATALI. The number of classified aerosol layers as indicated by the 'i' row and the 'j' column is given inside each '(i,j)' square (Mylonaki, et al., 2021a).

#### 3.1.1. NATALI VERSUS MD

Specifically, Figure 33a presents the one-by-one comparison between the cases that MD classified as *1 type* or *mixture* against those classified as *other* by NATALI, while Figure 33b presents the number of the MD *unknown* aerosol layers classified as *1 type* by NATALI. Finally, in Figure 33c we present the number of the MD *unknown* aerosol layers classified as *mixture* or *other* by NATALI. The pie charts above each bar (Figure 33b) and each stem (Figure 33c) reveal the mean frequencies of observation of each aerosol type calculated by MD.



**Figure 33.** a) One-by-one comparison between the cases classified as '1 type' or 'mixture' by the Mahalanobis distance aerosol classification algorithm (MD) and as 'other' by the neural network aerosol classification algorithm (NATALI). The number of aerosol layers classified as indicated by the 'i' row and the 'j' column is given inside each '(i,j)' square; b) Number of the aerosol layers marked 'unknown' by MD and were classified as '1 type' by NATALI; c) Number of aerosol layers marked 'unknown' by MD and were classified as '1 type' by NATALI; c) Number of aerosol layers marked 'unknown' by MD and were classified as 'mixture' or 'other' by NATALI. The pie charts above each bar and each stem reveal the mean frequencies of observation of each aerosol type calculated by MD. cc: clean continental, cp: continental polluted, s: smoke, m: marine, d:dust, /cc: cloud contaminated, defined in Table 3 (Mylonaki, et al., 2021a).

The inability of MD to classify the aerosol layers according to NATALI's classification (Figure 33a) can be attributed to the intensive aerosol layers' optical property mean values not being within the accepted 'borders' of the aerosol types predefined by MD (see Section 1.7.2.1). On the other hand, concerning the inability of MD to sufficiently classify an aerosol layer to an actual aerosol type category compared to NATALI's *1 type* typing results, MD would have predicted them correctly if the typing criteria of MD were less strict (i.e., if the accepted borders of the predefined aerosol types were broader) indicated by the pie charts above each bar indicate (Figure 33b). However, there is an exception to this statement: this does not seem to be the case for the *dust* type labeled by NATALI, to which MD gave a 40% probability to be of *continental polluted*, 30% of *smoke*, and only 30% of *dust* and *mixed dust* origin (Figure 33b; dark red column). On the other hand, concerning the *mixture* and *other* categories resulted from NATALI typing procedure, MD found a high contribution of *dust* and *mixed dust* aerosols (approximately 50%) inside these layers (yellow, orange, and dark red aerosol types according to the pie charts above the stems; Figure 33c), though not high enough to finally classify them into the corresponding aerosol types. This generally means medium to large-sized and medium to high depolarizing aerosol particles probably occurring due to the atmospheric ageing and mixing atmospheric processes. After all, as mentioned above, the MD scheme considers only two aerosol mixtures.

#### 3.1.2. MD VERSUS SCAN

Accordingly, Figure 34a presents the one-by-one comparison between the cases that were classified as *1 type* by MD and as *mixture* by SCAN, while Figure 34b shows the number of the MD's *unknown* cases classified as *1 type* by SCAN. Finally, Figure 34c presents the number of the MD's *unknown* cases classified as *mixture* or *other* by SCAN. The pie charts above each bar (Figure 34b) and each stem (Figure 34c) reveal the mean frequencies of observation of each aerosol type as calculated by MD.



**Figure 34.** a) One-by-one comparison between the cases classified as '1 type' by the Mahalanobis distance aerosol classification algorithm (MD) and as 'mixture' by the source classification analysis algorithm (SCAN). The number of aerosol layers classified as indicated by the 'i' row and the 'j' column is given inside each '(i,j)' square; b) Number of aerosol layers marked 'unknown' by MD and were classified as '1 type' by SCAN; c) Number of aerosol layers marked 'unknown' by MD and were classified as 'a type' by SCAN; c) Number of aerosol layers marked 'unknown' by MD and were classified as 'mixture' by SCAN. The pie charts above each bar and each stem reveal the mean frequencies of each aerosol type as calculated by MD. cc: clean continental, cp: continental polluted, s: smoke, m: marine, d:dust, /cc: cloud contaminated, defined in Table 3 (Mylonaki, et al., 2021a).

The misclassification of an aerosol layer by MD compared to the classification as a *continental polluted and smoke* layer by SCAN (Figure 34a) could again be attributed to difference of the aerosol layer's mean intensive optical property values from the predefined ones assumed by the MD classification algorithm (Figure 21). Specifically, the *continental polluted and smoke* cases classified by SCAN were attributed to either the *clean continental polluted and smoke* cases classified by SCAN were attributed to either the *clean continental polluted* categories by MD (Figure 34a). On the other hand, from the MD's *unknown* cases, eight were classified as *continental polluted* (Figure 34b), and another six as *continental polluted and smoke* by SCAN (Figure 34c). From these MD *unknow* cases (Figure 34b,c), there were another 11 cases classified as *clean continental* (two cases), *dust* (one case), *marine* (one case), *clean continental and marine* (one case), *continental polluted and clean continental* (one case), *continental polluted and marine* (two cases) by SCAN. All of these MD difficulties to efficiently characterize an aerosol layer are attributed to its classification procedure which is based on the frequently overlapping ellipses referring to different aerosol types (Figure 21), especially for the *continental polluted* and *smoke* aerosol categories.

#### 3.1.3. SCAN VERSUS NATALI

In this section we present the comparison between the typing results of the SCAN and NATALI aerosol layer classification algorithms. However this time, Figure 35 presents a one-by-one comparison between the cases that (a) SCAN classified as *mixture* and NATALI as *1 type*, (b) SCAN classified as *1 type* and NATALI as *other*, and (c) SCAN classified as *mixture* and NATALI as *other*.



Figure 35. One-by-one comparison between the cases classified by a) the neural network aerosol classification algorithm (NATALI) as '1 type' and the source classification analysis (SCAN) algorithm as 'mixture', b) NATALI as 'other' and SCAN as '1 type' and c) NATALI as 'other' and SCAN as 'mixture'. The number of aerosol layers classified as indicated by the 'i' row and the 'j' column is given inside each '(i,j)' square. cc: clean continental, cp: continental polluted, s: smoke, m: marine, d:dust, /cc: cloud contaminated, as defined in Table 3 (Mylonaki, et al., 2021a).

From Figure 35 it can be concluded that the aerosol optical properties of the *continental polluted and smoke* (cp+s) mixture based on SCAN's classification were once more attributed to either the *clean continental* or *continental polluted* aerosol types based on NATALI's classification due to the latter's dependence on the intensive aerosol optical properties which are overlapping for the *continental polluted, clean continental* and *smoke* aerosol categories. Specifically, of the 12 cases classified as *continental polluted and smoke* by SCAN, six of them were labelled as *clean continental polluted and marine/cloud-contaminated* (Figure 35a), while another two were labelled as *continental polluted and marine/cloud-contaminated* (Figure 35c). Moreover, of the six cases classified as *continental polluted by* SCAN (Figure 35b), three of them were classified as *continental polluted and marine/cloud-contaminated*, and only one as *continental polluted, smoke, and marine or cloud-contaminated* by NATALI.

#### 3.1.4. A CASE STUDY (POTENZA, 30.07.2015)

Apart from the aforementioned misclassification of NATALI's typing results regarding the *continental polluted and smoke* category of SCAN, there are a couple of limitations of NATALI, SCAN and MD typing schemes that should be also mentioned, and they can be more easily understood if given in an example. Thus, we present a case study of three aerosol layers observed over Potenza in 30 July 2015 (21:26 UTC).

Figure 36 illustrates the: a)  $\beta_{aer,355}$ ,  $\beta_{aer,532}$ , and  $\beta_{aer,1064}$ ; b)  $\alpha_{aer,355}$  and  $\alpha_{aer,532}$ ; c) *LR*<sub>355</sub> and *LR*<sub>532</sub>; d) *AEa*355/a532, *AE* $\beta$ 355/ $\beta$ 532, and *AE* $\beta$ 532/ $\beta$ 1064; and e)  $\delta_{aer,355}$  of the aerosol layers observed over Potenza in 30 July 2015 (21:26 UTC). The bottom (red horizontal line) and top (black horizontal line) boundaries of the aerosol layers were observed at (1) 2.8 and 3.1 km (lower layer), (2) 3.4 and 3.9 km (middle layer), and (3) 4.5 and 5.4 km asl. (upper layer), respectively.



**Figure 36.** Vertical distribution of the (a) backscatter coefficient at 355, 532 and 1064 nm, (b) extinction coefficient at 355 and 532 nm, (c) lidar ratio at 355 and 532 nm, (d) Ångström exponent extinction- and backscatter-related, (e) particle linear depolarization ratio at 532 nm observed Potenza in 30 July 2015 (21:26 UTC) (Mylonaki, et al., 2021a).

Table 4. Mean values and standard deviations of the lidar ratio at 355 and 532 nm, Ångström exponent extinction- and backscatter-related and particle linear depolarization ratio at 532 nm observed Potenza in 30 July 2015 (21:26 UTC) (Mylonaki, et al., 2021a).

Layer	LR <sub>355</sub> [sr]	LR <sub>532</sub> [sr]	ΑΕα355/α532	ΑΕβ355/β532	ΑΕβ532/β1064	$\delta_{aer,532}$ [%]
bottom	35.97±1.09	24.55±4.15	1.14±0.44	0.16±0.04	0.97±0.04	13.5±0.4
middle	31.05±2.11	22.50±1.69	0.86±0.25	0.06±0.13	0.79±0.06	15.4±1.5
top	38.77±4.81	24.44±3.39	0.56±0.37	-0.58±0.25	0.72±0.07	24.8±1.0

The mean intensive aerosol optical properties within the aerosol layers observed over Potenza in 30 July 2015 are presented in Table 4. In particular, the *LR* values were found to be low (<39 sr at 355 nm and <25 sr at 532 nm), while the relevant *AE values* remained mainly below 1.0 for all three observed aerosol layers. The difference between these three aerosol layers is the  $\delta_{532}$  value, which was found to ascend from 13.5±0.4% (bottom layer) to 15.4±1.5% (middle layer) and finally reached the value of 24.8±1.0% (top layer), indicating coarse semi-depolarizing aerosols at lower altitudes (<4.5 km) and highly depolarizing aerosols higher, most probably of dust origin.

To have a closer look on the origin of these aerosol plumes, Figure 37 illustrates the 6-days (144 h) backward trajectory analysis for air masses ending over Potenza (40.60°N, 15.72°E) at (1) 3000, (2) 3800, and (3) 5000 m asl. in 30 July 2015 (21:00 UTC). The color bar indicates the trajectory's height above sea level for each hour of its journey.

According to Figure 37 the air masses reaching Potenza at 3000 m asl. (Figure 36, lower layer) traveled at a height of  $\sim 2000$  m asl. throughout their 6-days journey. These air masses started from northwestern Africa, remained in the area almost 3 days, and then passed over southern Spain before reaching Potenza (Figure 37(1)). The aerosol layer observed over Potenza at 3800 m asl. (Figure 36, middle layer) originated from the northern

Atlantic Ocean at a height of ~ 5000 m asl. 6 days before and slowly descended to lower altitudes before passing over northern Spain near ground level. In the following 2 days, the air masses traveled at a height of 2000–4000 m asl. from Spain to Italy over the Mediterranean Sea before reaching Potenza (Figure 37(2)). Finally, the upper aerosol layer observed over Potenza at 5000 m asl. (Figure 36, upper layer) had a similar origin as the previous one except the first 3 days of its journey when the air masses traveled over the Atlantic Ocean at low altitudes (<1000 m asl.), enhancing the marine contribution to that layer (Figure 37(3)).



**Figure 37.** HYSPLIT (GDAS Meteorological Data) 6-days (144 h) air-mass backward trajectory ending over Potenza (40.60°N, 15.72°E) at (1) 3000, (2) 4000, and (3) 5000 m asl. in 30 July 2015 (21:00 UTC). The color bar indicates the trajectory's height asl. for each hour of its journey (Mylonaki, et al., 2021a).

Using these trajectories SCAN labelled 78 h as *dust* and 11 h as *continental polluted* concerning the lower layer observed over Potenza (Figure 38c, lower layer), finally classifying this aerosol layer as a mixture of *continental polluted+dust*. Concerning the middle aerosol layer, SCAN labelled 64 h (out of 144 total hours) as *continental polluted* aerosols (Figure 38, middle layer), while a contribution of *dust* aerosols is expected according to the  $\delta_{aerr,532}$  values. This indicates that the predefined domains as possible aerosol sources within the SCAN's map reduce the spatial accuracy of the classification method, especially when it comes to the southern Mediterranean Sea in the vicinity of Sahara. In these cases, an atmospheric dust model (e.g., BSC DREAM) should be used synergistically. Finally, concerning the upper aerosol layer observed over Potenza, SCAN labelled 66 h as *continental polluted* aerosols and 44 h as *marine* aerosols (Figure 38c, upper layer), the latter again being highly improbable at that height (~ 5 km asl.) as aerosol layers are not usually affected by the sea spray at these heights (>2.5 km asl.).

On the other hand, the lower and middle aerosol layers were classified as *marine/cloud contaminated* and the upper one as *mineral* mixtures/volcanic by NATALI (Figure 38a). However, regarding the lower and middle aerosol layers, they are highly unlikely to be of *marine* origin, as they are not affected by the sea spray at these heights (>2.5 km asl.). These erroneous classification results have been affected by the low *LR* values (22- $35\pm5$  sr). The same goes for the MD typing scheme (Figure 38b) which gave the lower aerosol layer a 41% probability to be of *continental polluted* origin, while there was also a 22% probability for the layer to be of *clean continental* origin. Again, these erroneous classification results have been affected by the low *LR* values.



**Figure 38.** Typing results of the aerosol layers observed over Potenza at 3 (bottom), 3.8 (middle), and 5 km (top) asl. in 30 July 2015 by a) the neural network aerosol classification algorithm (NATALI), b) the Mahalanobis distance aerosol classification algorithm (MD), and c) the source classification analysis (SCAN). Different colors refer to different aerosol types or mixtures. Concerning (b), the percentages represent the normalized probabilities of each aerosol type assumed by MD, whereas concerning (c) the numbers represent the time (in hours) within which the air mass circulated over specified domains as specified within SCAN algorithm (Mylonaki, et al., 2021a).

These are distinctive examples of the NATALI's, MD's and SCAN's aerosol classification strengths and limitations.

## 3.2. OPTICAL PROPERTIES OF AEROSOL LAYERS OBSERVED OVER 4 EARLINET LIDAR SITES (2015-2018)

Additionally, the mean aerosol optical properties of each aerosol type derived from the NATALI, MD, and SCAN classification algorithms are presented in Table 5. The correspondence between the aerosol types and the terminology defined in the classification methods is presented in Table 3.

Table 5. Mean values of the lidar ratio at 355 and 532 nm, Ångström exponent extinction- and backscatter-related and particle linear depolarization ratio at 532 nm of the aerosol types observed over the four European lidar sites members of the European Aerosol Research Lidar Network (EARLINET) according to a) the neural network aerosol classification algorithm (NATALI), b) the Mahalanobis distance aerosol classification algorithm (MD), and c) the source classification analysis (SCAN) (Mylonaki, et al., 2021a).

	Meth od	Clean Cont.	Cont. Pollu ted	Smok e	Marine /Cl. Cont.	Dust+Ma rine	Cont. Polluted+S moke	Cont. Polluted+M arine	Cont. Polluted+Dust+M arine/Cl. Cont.
No of cases	NAT	24	24	-	11	-	-	14	7
	MD	29	13	-	-	4	-	-	-
	SCA N	-	22	5	-	-	16	4	-
LR355 [sr]	NAT	46.3± 5.0	57.5± 6.0	-	34.6±3. 5	-	-	69.0±11.0	41.4±4.3

	Meth od	Clean Cont.	Cont. Pollu ted	Smok e	Marine /Cl. Cont.	Dust+Ma rine	Cont. Polluted+S moke	Cont. Polluted+M arine	Cont. Polluted+Dust+M arine/Cl. Cont.
	MD	44.9± 5.1	57.0± 6.4	-	-	42.5±4.4	-	-	-
	SCA N	-	50.2± 5.5	45.8± 4.7	-	-	$52.4\pm7.9$	45.3±5.9	-
LR532 [sr]	NAT	37.3± 3.7	61.6± 6.7	-	27.3±3. 4	-	-	31.0±5.3	43.1±4.6
	MD	38.9± 4.6	61.0± 6.9	-	-	46.0±4.7	-	-	-
	SCA N	-	49.2± 5.4	37.2± 4.0	-	-	$47.3\pm7.1$	54.8±7.2	-
AEα355/α 532	NAT	2.0±0 .3	1.2 <u>+</u> 0 .3	-	1.7±0.3	-	-	0.9±0.4	-0.1±0.3
	MD	1.6±0 .3	1.1±0 .3	-	-	-0.2±0.2	-	-	-
	SCA N	-	1.5±0 .3	1.6±0 .3	-	-	$1.5 \pm 0.4$	0.3±0.3	-
ΑΕβ355/β 532	NAT	1.1±0 .3	1.4±0 .3	-	0.9±0.3	-	-	-1.2±0.4	0.0±0.3
	MD	1.1±0 .3	1.2±0 .3	-	-	0.0±0.2	-	-	-
	SCA N	-	1.2±0 .3	0.9±0 .3	-	-	$0.8 \pm 0.4$	0.5±0.3	-
ΑΕβ532/β 1064	NAT	1.2±0 .2	1.1±0 .2	-	1.0±0.2	-	-	1.3±0.2	0.7±0.1
	MD	1.1±0 .2	1.1±0 .2	-	-	0.7±0.1	-	-	-
	SCA N	-	1.0±0 .2	1.3±0 .2	-	-	$1.3 \pm 0.2$	0.7±0.2	-
δ <sub>aer,532</sub> [%]	NAT	3.4±1 .4	2.3±0 .7	-	4.1±1.6	-	-	2.7±1.6	13.0±4.4
	MD	3.0±1 .2	2.7±1 .0	-	-	15.2±5.3	-	-	-
	SCA N	-	3.3±1 .3	2.7±1 .1	-	-	$4.0\pm1.9$	7.7±3.8	-

#### 3.2.1. CLEAN CONTINENTAL (CC) AEROSOLS

Aerosol layers classified as *clean continental* both by NATALI and MD presented medium  $LR_{355}$  values (45-46±5 sr), medium to low  $LR_{532}$  values (37-39±5 sr), medium  $AE\beta355/\beta532$  and  $AE\beta532/\beta1064$  values (1.0±0.3), high  $AE\alpha355/\alpha532$  values (2.0±0.3) and low  $\delta_{aer,532}$  values (3±1%).

#### 3.2.2. CONTINENTAL POLLUTED (CP) AEROSOLS

Aerosol layers classified as *continental polluted* by both NATALI and MD presented medium  $LR_{355}$  values (57±6 sr), slightly higher  $LR_{532}$  values (62±7 sr), medium  $AE\beta_{355}/\beta_{532}$ ,  $AE\beta_{532}/\beta_{1064}$ , and  $AE\alpha_{355}/\alpha_{532}$  values (1.1–1.4±0.3), and low  $\delta_{aer,532}$  values (3±1%). On the other hand, the same aerosol layers classified by SCAN presented medium  $LR_{355}$  and  $LR_{532}$  values (49-50±6 sr), medium  $AE\beta_{355}/\beta_{532}$ ,  $AE\beta_{532}/\beta_{1064}$ , and  $AE\alpha_{355}/\alpha_{532}$  values (1.0-1.5±0.3), and low  $\delta_{aer,532}$  (3±1%). The similarity of these values to those of the *clean continental* aerosol type is the reason why it remains difficult to distinguish between these two aerosol types.

#### 3.2.3. SMOKE (S) AEROSOLS

Smoke aerosol layers, according to SCAN's classification, showed medium  $LR_{355}$  values (50±5 sr), medium to small  $LR_{532}$  values (37±4 sr), medium  $AE\beta355/\beta532$  and  $AE\beta532/\beta1064$  values (0.9-1.3±0.3), medium to high  $AE\alpha355/\alpha532$  values (1.6±0.3), and low  $\delta_{aer,532}$  values (3±1%). Again, the similarity of these values to those of the *clean continental* and *continental polluted* aerosol types is the reason why it remains difficult to distinguish between these three aerosol types.

The mean intensive aerosol optical properties of *continental clean, continental polluted* and *smoke* aerosol types have been compared to those reported in previous studies (Ansmann, et al., 2003; Baars, et al., 2012; Balis, et al., 2003; Burton, et al., 2013; Giannakaki, et al., 2010; Groß, et al., 2013; Mattis, et al., 2008; Müller, et al., 2005, 2007; Omar, et al., 2009; Papanikolaou, et al., 2020; Wandinger, et al., 2002;) and found to be in accordance with them.

#### 3.2.4. MARINE/CLOUD-CONTAMINATED (M/CC) AEROSOLS

Aerosol layers classified as *marine/cloud-contaminated* by NATALI showed low values of  $LR_{355}$  (35±4 sr), even lower  $LR_{532}$  values (27±3 sr), small to medium  $AE\beta355/\beta532$  and  $AE\beta532/\beta1064$  values (0.9-1.0±0.3), increased  $AE\alpha355/\alpha532$  values (1.7±0.3), and low  $\delta_{aer,532}$  values (4±2 %). These values are in accordance with those reported by Cattrall et al., (2005), Burton et al. (2012, 2013), and Dawson et al., (2015) concerning *marine* aerosols.

#### 3.2.5. DUST AND MARINE (D+M) AEROSOLS

Concerning the *dust and marine* mixture, according to the MD's classification, these aerosols showed medium to low  $LR_{355}$  and  $LR_{532}$  values (43-46±5 sr), small  $AE\beta355/\beta532$ ,  $AE\beta532/\beta1064$  and  $AE\alpha355/\alpha532$  values (-0.2-0.7±0.2), and medium  $\delta_{aer,532}$  values (15±5 %). These values indicate large and depolarizing aerosol particles, confirming that the type of these particles is as a mixture of *dust and marine* ones, according to Burton et al. (2012) and Papagiannopoulos et al., (2016).

#### 3.2.6. CONTINENTAL POLLUTED AND SMOKE (CP+S) AEROSOLS

The continental polluted and smoke mixed aerosols, according to SCAN, showed medium  $LR_{355}$  and  $LR_{532}$  values (47-52±8 sr), medium  $AE\beta355/\beta532$  and  $AE\beta532/\beta1064$  values (0.8-1.3±0.4), high  $AE\alpha355/\alpha532$  values

(1.5±0.4), and low  $\delta_{aer,532}$  values (4±2%). The medium  $LR_{355}$  and  $LR_{532}$  values indicate *continental polluted* aerosols (Burton, et al., 2013; Giannakaki, et al., 2010; Groß, et al., 2013; Müller, et al., 2007; Papanikolaou, et al., 2020), while the high  $AE\alpha 355/\alpha 532$  values indicate *smoke* aerosols (Müller, et al., 2005; Wandinger, et al., 2002).

#### 3.2.7. CONTINENTAL POLLUTED AND MARINE (CP+M) AEROSOLS

The continental polluted and marine mixture, according to NATALI, showed a large difference between the  $LR_{355}$  and  $LR_{532}$  values, with the latter being smaller ( $LR_{355}=69\pm11$  sr,  $LR_{532}=31\pm5.3$  sr). The AEa355/a532,  $AE\beta355/\beta532$ , and  $\delta_{aer,532}$  showed low values ( $0.9\pm0.4$ ,  $-1.2\pm0.4$ ,  $2.7\pm1.6$ , respectively), while the  $AE\beta532/\beta1064$  showed large values ( $1.3\pm0.2$ ). On the other hand, the same aerosol type, according to SCAN, showed medium  $LR_{355}$  values ( $45\pm6$  sr), increased  $LR_{532}$  values ( $55\pm7$  sr), low  $AE\beta355/\beta532$ ,  $AE\beta532/\beta1064$ , and AEa355/a532 values ( $0.3-0.7\pm0.3$ ), and low  $\delta_{aer,532}$  values ( $8\pm4\%$ ). The low  $\delta_{aer,532}$  values are indicative of non-depolarizing aerosols such as continental polluted (Burton, et al., 2013; Giannakaki, et al., 2010; Groß, et al., 2013; Müller, et al., 2007) and marine aerosols (Gross, et al., 2011; Burton, et al., 2012, 2013; Gross, et al., 2013), whereas the low  $AE\beta355/\beta532$ ,  $AE\beta532/\beta1064$ , and AEa355/a532 values are indicative of coarse-mode aerosols such as marine ones. However, the increased  $LR_{532}$  values are indicative of continental polluted aerosols rather than marine ones.

## 3.2.8. CONTINENTAL POLLUTED, DUST, AND MARINE OR CLOUD CONTAMINATED (CP+D+M/CC) AEROSOLS

Finally, the *continental polluted*, *dust*, and *marine or cloud-contaminated* aerosol mixture, classified by NATALI, showed medium  $LR_{355}$  and  $LR_{532}$  values (41-43±5 sr), low  $AE\beta355/\beta532$ ,  $AE\beta532/\beta1064$ , and  $AE\alpha355/\alpha532$  values (-0.1-0.7±0.3), and medium  $\delta532$  values (13±4 %). Here, the medium  $\delta_{aer,532}$  values are indicative of *dust mixtures* (Burton, et al., 2015; Groß, et al., 2011, 2015), while the low  $AE\beta355/\beta532$ ,  $AE\beta532/\beta1064$ , and  $AE\alpha355/\alpha532$  values are indicative of coarse-mode aerosols, such as *dust* and *marine* ones.

## 3.3. PARTICLE LINEAR DEPOLARIZATION RATIO OF AEROSOL LAYERS OBSERVED OVER THE CITY OF VOLOS, GREECE DURING THE PANACEA SUMMER CAMPAIGN (JULY 2019)

Concerning the aerosol layers observed over the city of Volos, in July 2019, Table 17 summarizes their optical properties. The frequency of observation of the different aerosol types is indicated in Figure 39, where each aerosol type is denoted by a different color.

The majority (40%) of the total number of 42 aerosol layers observed over Volos was characterized as *continental polluted*, while, 26% *smoke*, 21% *marine and continental polluted* and 12% *dust* aerosol layers were also observed. The high frequency of *marine and continental polluted* aerosol category is attributed to the recirculation of air masses when the sea-breeze advects *marine* aerosols over the city of Volos, thus producing the *continental polluted*+*marine* mixture.

In Figure 40 we present the geometrical properties (top), the  $\beta_{aer,532}$  (middle) and  $\delta_{aer,532}$  (bottom) mean values within each observed aerosol observed over Volos during the period under study. The x-axis represents the number of the case according to Table 17. Each aerosol type is denoted by a different color.



**Figure 39.** Frequency of observation of 'continental polluted' (brown), 'smoke' (black), 'continental polluted and marine' (blue) and 'dust mixtures' (orange) aerosol types observed over Volos, Greece by the AIAS mobile depolarization lidar system during the PANhellenic infrastructure for Atmospheric Composition and climatE chAnge (PANACEA) summer campaign (07/2019) (Mylonaki, et al., 2021c).

#### 3.3.1. CONTINENTAL POLLUTED (CP) AEROSOLS

The *continental polluted* aerosol layers were, mainly, observed between 1 and 2 km height asl., although some were, also, observed above 2 km height (Figure 40, top, brown). These aerosol layers showed  $\beta_{aer,532}$  mean values ranging from 0.87 to 2.05 Mm<sup>-1</sup>sr<sup>-1</sup>, while the  $\delta_{aer,532}$  mean values lied within the range 3-5% (Figure 40, middle and bottom, brown; Table 6), which are in good agreement with those reported in the literature (Burton, et al., 2013; Groß, et al., 2013; Müller, et al., 2007; Table 7).

#### 3.3.2. Smoke (s) Aerosols

Likewise, the *smoke* aerosol layers were observed within the range 0.8-2.5 km asl. (Figure 40; top, black). In this case, the aerosol layers presented  $\beta_{aer,532}$  and  $\delta_{aer,532}$  mean values in the ranges 1.21-1.84 Mm<sup>-1</sup>sr<sup>-1</sup> and 3-9%, respectively (Figure 40, middle and bottom, black; Table 6). We observed, slightly higher  $\delta_{aer,532}$  values for this type of aerosols compared to *continental polluted* and *continental polluted*+*marine* aerosol categories which, according to the relevant literature, can be related to the atmospheric ageing (Burton, et al., 2013). Nevertheless, these findings are in good agreement with the corresponding ones reported in the literature (Burton, et al., 2013; Murayama, et al., 2004; Table 7).

#### 3.3.3. CONTINENTAL POLLUTED AND MARINE (CP+M) AEROSOLS

Additionally, the continental polluted mixed with marine aerosol layers' heights ranged from 0.8 to 2 km asl. (Figure 40, top, blue). The  $\beta_{aer,532}$  and  $\delta_{aer,532}$  mean values ranged from 0.97 to 2.27 Mm<sup>-1</sup>sr<sup>-1</sup> and from 2 to 6%, respectively (Figure 40, middle and bottom, blue; Table 7). For this aerosol type, Burton et al. (2013) suggested  $\delta_{aer,532}$  mean values ranging from 3 to 5% (Table 8), which is consistent with the findings of our study.



**Figure 40.** (Top) Height asl. [km], (middle) backscatter coefficient  $[Mm^{-1}sr^{-1}]$  at 532 nm, (bottom) particle linear depolarization ratio [%] at 532 nm, of aerosol layers observed over the city of Volos, Greece, by AIAS mobile depolarization lidar, during the PANhellenic infrastructure for Atmospheric Composition and climatE chAnge (PANACEA) summer campaign (July/2019) (Mylonaki, et al., 2021c).

**Table 6.** Mean aerosol backscatter coefficient and particle linear depolarization ratio for the various aerosol types observed over the city of Volos, Greece, by the AIAS mobile depolarization lidar, during the PANhellenic infrastructure for Atmospheric Composition and climatE chAnge (PANACEA) summer campaign (07/2019) (Mylonaki, et al., 2021c).

Aerosol type	Mean±stdev	Range	Median
Backscatter coefficient [sr <sup>-1</sup> Mn	n <sup>-1</sup> ] at 532 nm		
Continental Polluted and Marine	1.55±0.18	0.97-2.27	1.39
Continental Polluted	1.38±0.23	0.87-2.05	1.37
Smoke	1.43±0.19	1.21-1.84	1.39
Dust Mixtures	1.19±0.23	0.38-1.98	1.31
Particle linear depolarization ra	tio [%] at 532 nm		
Continental Polluted and Marine	4±1	2-6	4
Continental Polluted	4±1	2-5	4
Smoke	6±1	3-9	5
Dust Mixtures	20±4	13-29	20

#### 3.3.4. MIXED DUST (MD) AEROSOLS

Finally, the *dust mixtures* aerosol layers were, mainly, observed at higher altitudes (~3 km; Figure 40, top, orange). These aerosol layers showed  $\beta_{aer,532}$  and  $\delta_{aer,532}$  mean values within the ranges 0.38-1.98 Mm<sup>-1</sup>sr<sup>-1</sup> and 13-29 %, respectively (Figure 40, middle and bottom, brown; Table 6). These  $\delta_{aer,532}$  values are indicative of dust dominated aerosol layers (Burton, et al., 2012, 2013; Groß, et al., 2011, 2013, 2015, Table 7).

**Table 7.** Mean particle linear depolarization ratio values of different aerosol types observed over Volos, Greece by the AIAS mobile depolarization lidar during the PANhellenic infrastructure for Atmospheric Composition and climatE chAnge (PANACEA) summer campaign (07/2019) and the corresponding ranges reported in the literature (Mylonaki, et al., 2021c).

Aerosol type	δaer,532	Reference	
Continental Polluted	<5 %	Müller, et al., 2007	
	3-7 %	Burton, et al 2013	
	3-11 %	Gross, et al., 2013	
	2-5 %	this study	
Smoke	5-8 %	Murayama, et al., 2004	
	2-3 %	Müller, et al., 2005	
	4-9 % (smoke)	Burton, et al., 2013	
	3-6 % (fresh smoke)	Burton, et al., 2013	
	4-12 %	Gross, et al., 2013	
	2-3 %	Burton, et al., 2015	
	3-9 %	this study	
Dust mixtures	12-23 %	Gross, et al., 2011	
	20-35 %	Burton, et al., 2012	
	13-20 %	Burton, et al., 2013	
	21-31 %	Gross, et al., 2013	
	12-23 %	Gross, et al., 2016	
	20-33 %	Sicard, et al., 2016	
	13-29 %	this study	
Continental Polluted mixed	3-5 %	Burton, et al., 2013	
with Maine	2-6 %	this study	

## 3.4. OPTICAL AND MICROPHYSICAL PROPERTIES OF SMOKE AEROSOL LAYERS AND MIXTURES OBSERVED OVER THE EARLINET LIDAR SITE OF ATHENS, GREECE (2011-2019)

In our 3<sup>rd</sup> study we revealed 34 free-tropospheric aerosol layers observed over Athens by the EOLE lidar system in the time period 2011-2019. These layers were sorted into three different aerosol categories: *smoke* (s), *smoke and continental polluted* (s+cp), and *smoke and mixed dust* (s+md) (Figure 41, blue, red, and yellow colors, respectively).



**Figure 41.** Left) Number of aerosol layers observed over Athens, Greece within the years 2011–2019, and sorted into one of the three aerosol categories by the source classification analysis typing algorithm (SCAN); Right) frequency of observation of the aerosol categories out of the 34 total aerosol layers. The three aerosol categories: smoke-'s' (blue), smoke and continental polluted-'s+cp' (red), and smoke mixed with dust and continental polluted or marine-'s+md' (yellow) (Mylonaki, et al., 2021b).

In particular, the aerosol layers were studied from 2011 to 2019, with the majority of them observed in 2014 (eight layers) and the minority in 2013, when no aerosol layers were found according to our methodology. Specifically, aerosol layers from all the three aerosol categories were observed within the years 2011, 2012, and 2014, while at least two aerosol categories were observed within the years 2015, 2016, 2017, and 2019. The aerosol layers observed during 2018 were of only one aerosol category (Figure 41a). Subsequently, out of the 34 aerosol layers in this study, 18% were characterized as *smoke* (s), 29% as *continental polluted mixed with smoke* (s+cp), and 53% as *smoke mixed with dust or mixed dust* (s+md) (Figure 41b).



**Figure 42.** Mean values of aerosol: (a) backscatter coefficient  $[M\mu^{-1}sr^{-1}]$ ; (b) extinction coefficient  $[sr^{-1}]$ ; (c) lidar ratio [sr]; (d) Ångström exponent, and (e) ratio of the LRs (LR532/LR355), of each aerosol category, observed over Athens, Greece during the time period 2011-2019, by the EOLE lidar system. The different aerosol categories are denoted with different symbols ('s'-circle for smoke, 's+cp'-square for smoke and continental polluted, and 's+md'-diamond for smoke mixed with dust and continental polluted or marine aerosols). The blue, green, and red colors in (a–c) stand for the wavelengths 355, 532, and 1064 nm, respectively, while in (d) for extinction 355/532 (a), backscatter 355/532 (b1) and backscatter 532/1064 (b2)-related Ångström exponents, respectively (Mylonaki, et al., 2021b).

All aerosol layers correspond to nighttime lidar measurements, thus from all these layers the full set of aerosol optical properties is provided ( $\beta_{aer}$ ,  $\alpha_{aer}$ , *LR*, *AE*). The mean values within the geometrical boundaries of each aerosol layer of each aerosol category are presented in Figure 42 and are also summarized in Table 8.

The *smoke and continental polluted*  $\beta_{aer}$  mean values (Figure 42a square symbol) were larger than those of the other two aerosol categories in all three wavelengths, whereas the *smoke* category (Figure 42a circle symbol) presented the lower  $\beta_{aer}$  mean values. The same behavior was reported for the  $\alpha_{aer}$  parameter (Figure 42b), indicating amplified scattering mechanisms for the *mixed smoke* aerosols and less for the *pure smoke* aerosols. Concerning the *LR* mean values (Figure 42c), they were larger at 532 nm (green color) than at 355 nm (blue color) for all aerosol categories in accordance with Ansmann et al. (2009); Haarig et al. (2018) and Müller et al. (2007). On the other hand, concerning the *smoke and mixed dust LR* mean value (Figure 42c diamond symbol), a great difference of 24 sr was observed between the two wavelengths (Table 8; 38±9 sr at 355 nm and 62±14 sr at 532 nm). However, the larger values were reported for the *smoke category* (Figure 42c circle symbol): 57±10 sr at 355 nm and 73±11 sr at 532 nm, whereas the corresponding *smoke and continental polluted LR* values were 51±5 sr and 59±10 sr, respectively (Table 8).

The *smoke* and *smoke* and *continental polluted* AE backscatter-related mean values were >1 (Figure 42d, circle and square, respectively) indicating the presence of smaller particles. The *smoke* and *mixed* dust AE extinction-related parameter (Figure 42d, blue diamond) presented large standard deviation  $(0.5\pm0.3)$  indicating the presence of larger aerosols in the layers of this category in addition to the small-sized smoke ones (Ansmann, et al., 2009). Finally, the ratio *LR*<sub>532</sub>/*LR*<sub>355</sub> (Figure 42e) was found to be >1 for all of the aerosol categories which, according to Nicolae et al. (2013), indicate the presence of aged smoke particles, thus supporting our classification methodology, which also marked as aged all aerosol layers in this study.

	Aerosol category		
	S	s+cp	s+md
this study	57±10	51±5	39±5
literature	21-67	69±1	35-92
this study	73±11	59±10	62±12
literature	26-80	65±1	32-75
this study	0.90±0.52	1.13±0.44	0.49±0.88
literature	0.64-2.3	1.35±0.02	0.50-1.70
this study	1.43±0.27	1.35±0.09	1.56±0.21
literature	~1.90		0.44-1.50
this study	1.67±0.15	1.70±0.09	1.58±0.14
literature	~1.90		0.44-1.50
	this study literature this study literature this study literature this study literature this study literature this study literature	Aerosol categorysthis study57±10literature21-67this study73±11literature26-80this study0.90±0.52literature0.64-2.3this study1.43±0.27literature~1.90this study1.67±0.15literature~1.90	Aerosol category           s         s+cp           this study         57±10         51±5           literature         21-67         69±1           this study         73±11         59±10           literature         26-80         65±1           this study         0.90±0.52         1.13±0.44           literature         0.64-2.3         1.35±0.02           this study         1.43±0.27         1.35±0.09           literature         ~1.90         1.70±0.09           literature         ~1.90         1.70±0.09

**Table 8.** Mean intensive optical and microphysical properties of smoke (s), smoke and continental polluted (s+cp), and smoke mixed with dust and continental polluted or marine (s+md) aerosol layers observed over Athens, Greece by the EOLE lidar system during the time period 2011-2019. The range of the aforementioned properties reported in the literature for each aerosol category is also provided (Mylonaki, et al., 2021b).

		Aerosol category		
LR532/LR355	this study	1.27±0.36	1.17±0.34	1.39±0.57
	literature	0.9-1.4	0.9	0.7-1.0
References		(Alados-Arboledas, et al., 2011; Baars, et al., 2012; Burton, et al., 2012; Müller, et al., 2005; Murayama, et al., 2004; Nicolae, et al., 2013; Samaras, et al., 2015)	(Mamouri, et al., 2012)	(Ansmann, et al., 2009; Giannakaki, et al., 2016; Soupiona, et al., 2020)
Microphysical prope	rties			
reff [µm]	this study	0.24±0.14	0.24±0.13	0.24±0.11
	literature	0.13-0.44	0.40±0.14	0.17-0.45
n	this study	1.49±0.06	1.50±0.07	1.53±0.07
	literature	1.37-1.6	1.55±0.12	1.37-1.50
k	this study	0.013±0.004i	0.011±0.005i	0.011±0.005i
	literature	0.001i-0.053i	0.06±0.02	0.004i-0.007i
Vc [μm <sup>-3</sup> cm <sup>-3</sup> ]	this study	8.6±3.2	20.7±14.1	9.7±6.1
	literature	8-50		7.4-24.0
SSA 355 nm	this study	0.916±0.042	0.929±0.036*	0.928±0.037
	literature	0.760-0.890		0.948-0.964
SSA 532 nm	this study	0.932±0.023	0.936±0.024	0.933±0.025
	literature	0.790-0.997	0.63±0.11	0.937-0.958
SSA 1064 nm	this study	$0.918 \pm 0.008$	0.923±0.031*	0.915±0.045
	literature	0.740-0.980		
References		(Ansmann, et al., 2009; Balis, et al., 2003; Giannakaki, et al., 2016; Haarig, et al., 2018; Janicka, et al., 2017; Murayama, et al., 2004; Nicolae, et al., 2013; Ortiz-Amezcua, et al., 2017; Samaras, et al., 2015; Veselovskii, et al., 2015; Wandinger, et al., 2002)	(Mamouri, et al., 2012)	(Ansmann, et al., 2009; Janicka, et al., 2017; Soupiona, et al., 2020)

\* Introduced in the literature within this study.

The mean aerosol microphysical properties (i.e., *reff, n* and *k*, *Vc*, and *SSA*) at three different wavelengths (355-532-1064 nm) are, also, presented in Table 8 and Figure 43. No significant differences within the error bars were observed between the mean values of the sub-aerosol categories of this study, except of the *smoke and continental polluted Vc* mean value ( $20.7\pm14.1 \ \mu m^{-3} cm^{-3}$ ) (Figure 43d, square symbol), which found to be ~100% larger than the ones of the *smoke* and *smoke and mixed dust* aerosol categories ( $8.6\pm3.2 \ \mu m^{-3} cm^{-3}$  and  $9.7\pm6.1 \ \mu m^{-3} cm^{-3}$ , respectively). This can be attributed to the low atmospheric heights of the observed layers of that specific type (Table 15) which was, also, discussed in Veselovskii et al., (2015).



**Figure 43.** Mean aerosol microphysical properties: (a) effective radius ( $\mu$ m); (b) real part of refractive index; (c) imaginary part of refractive index; (d) volume concentration ( $\mu$ m<sup>3</sup>cm<sup>-3</sup>), and (e) single scattering albedo in 355 nm (blue), 532 nm (green), and 1064 nm (red) for the smoke (s; circle), smoke and continental polluted (s+cp; square), and smoke mixed with dust and continental polluted or marine (s+md; diamond) aerosol categories of aerosol layers observed over Athens, Greece, by the EOLE lidar system during the time period 2011-2019. (Mylonaki, et al., 2021b)

Nevertheless, without taking into account the high retrieval uncertainty, some differences in the *n* and *k values* could be identified (Figure 43c). The highest *smoke k* clearly denotes high absorption of the pure aerosols, while the scattering effect became more prominent for the mixture of various other types with dust. Notice, also, that during the inversion process, the effects related to the particle non-sphericity were not considered and the inversion was made with the assumption of a spherical particle shape, since the main component studied here was BB particles which are rather small.

Concerning the *reff*, its mean value  $(0.24\pm0.14 \,\mu\text{m})$  does not clearly reflect the variability of this property per case for all the aerosol categories of this study (Table 8), because the information is lost during averaging within each category. For completeness, we provide Figure 44, where we demonstrate the case-by-case variability of the *reff*, showing that for our data set, this property ranged from 0.11 to 0.52  $\mu$ m. The SSA mean values at 532 nm were slightly larger than those at 355 nm and 1064 nm, although when considering the corresponding standard deviations, this difference is negligible.



**Figure 44.** Case-by-case variability of the effective radius ( $\mu$ m) for the 'smoke' (s) (blue), 'smoke and continental polluted' (s+cp) (black), and 'smoke mixed with dust and continental polluted or marine' (s+md) (red) aerosol layers observed over Athens, Greece by the EOLE lidar system during the time period 2011-2019, numbered as in Table 15 (Mylonaki, et al., 2021b).

All the retrieved aerosol microphysical properties were compared to those reported in the literature and found to be in good accordance with them (Ansmann, et al., 2009; Balis et al., 2003; Giannakaki, et al., 2016; Haarig, et al., 2018; Janicka, et al., 2017; Murayama, et al., 2004; Nicolae, et al., 2013; Ortiz-Amezcua, et al., 2017; Samaras, et al., 2015; Soupiona, et al., 2020; Veselovskii, et al., 2015; Wandinger, et al., 2002). However, comparing our results to those in the literature can be misleading because the latter might reflect factors different from what are found over Athens.



**Figure 45.** Correlation between the variables LR532/LR355 and number of hours over burned areas for a) the smoke (s) aerosol layers; b) the smoke mixed with continental polluted (s+cp) aerosol layers observed over Athens, Greece by the EOLE lidar system during the 2011-2019 time period. The Source Classification Analysis (SCAN) used for the aerosol typing is able to retrieve the resident time (i.e., number of hours) of a HYSPLIT backward trajectory above a burned area. (Mylonaki, et al., 2021b)

Finally, the SCAN algorithm provided the resident time (i.e., number of hours) of a HYSPLIT backward trajectory over a burned area. This information versus the *smoke* and *smoke* and *continental polluted*  $LR_{532}/LR_{355}$  for each aerosol layer is presented in Figure 45. The *smoke*  $LR_{532}/LR_{355}$  variable increased as the number of hours over the burned areas increased, resulting in a high correlation between these two variables (correlation coefficient R<sup>2</sup>=0.82). On the other hand, the correlation coefficient of the *smoke* and *continental polluted*  $LR_{532}/LR_{355}$  correlation with the resident time was extremely low (R<sup>2</sup>=0.01) thus showing no correlation at all between the two variables of this aerosol category.

Thus, summarizing all the above:
### 3.4.1. SMOKE (S) AEROSOLS

Smoke aerosol layers showed medium  $LR_{355}$  (57±10 sr) and high  $LR_{532}$  values (73±11 sr) which are in accordance with those reported in previous studies concerning this aerosol type (Alados-Arboledas, et al., 2011; Baars, et al., 2012; Burton, et al., 2012; Müller, et al., 2005; Murayama, et al., 2004; Nicolae, et al., 2013; Samaras, et al., 2015). Additionally, high  $AE\beta355/\beta532$  and  $AE\beta532/\beta1064$  values (1.43-1.67±0.30) and relatively medium *reff* values (0.24±0.14) indicated the small-sized aerosols, while the low *Vc* values (8.6±3.2) indicated low aerosol concentrations. On the other hand, the high *SSA* values at all wavelengths (>0.9), the high *mR* values and the low *mI* values reflect more scattering than absorbing aerosols (Amiridis, et al., 2012; Janicka, et al., 2017; Marenco, et al., 2011; Murayama, et al., 2004; Veselovskii, et al., 2002), attributed to the *ageing* of the smoke aerosol layers.

### 3.4.2. SMOKE AND CONTINENTAL POLLUTED (S+CP) AEROSOLS

Likewise, *smoke and continental polluted* aerosol layers show medium  $LR_{355}$  (51±5 sr) and  $LR_{532}$  values (59±10 sr) which was also the reported by Mylonaki et al., (2021a) concerning this aerosol type. Additionally, high  $AE\beta 355/\beta 532$  and  $AE\beta 532/\beta 1064$  values (1.35-1.70±0.09) and relatively medium *reff* values (0.24±0.13) indicate the small aerosol size. However, this time, the high *Vc* values (20.7±14.1) indicate considerable aerosol concentrations. Additionally, the high *SSA* values at all wavelengths (>0.9), the high *n* values (1.50±0.07) and the low *k* values (0.011±0.005) reflect more scattering than absorbing aerosols (Adam, et al., 2020; Alados-Arboledas, et al., 2011; Amiridis, et al., 2012; Groß, et al., 2013; Janicka, et al., 2017; Marenco, et al., 2011; Müller, et al., 2005; Murayama, et al., 2004; Veselovskii, et al., 2002), most probably attributed to the atmospheric ageing of the observed aerosols.

### 3.4.3. SMOKE AND MIXED DUST (S+MD) AEROSOLS

The  $LR_{532}$  is also higher for this aerosol type (62±14 sr) than the  $LR_{355}$  (38±9 sr) with a great difference of 24 sr between the two wavelengths. Relatively small aerosols with high  $AE\beta355/\beta532$  and  $AE\beta532/\beta1064$  values (1.56-1.58±0.21) and low *reff* values (0.24±0.11), same as the other aerosol types reported in this study, were observed, showing the prevalence of the smoke over the dust aerosols in this mixture. The absence of other significant differences within the error bars between the mean values of the microphysical properties of this aerosol type compared to those of the *smoke* and *smoke and continental polluted* aerosol types reported in this study highlight that the smoke aerosols are indeed predominant in the aforementioned mixture.

Considering that the lidar data were processed by the SCC automatic lidar data processor, the propagation of the errors arising from the calculation of the  $\beta_{aer}$  and  $\alpha_{aer}$  parameters is discussed in (D'Amico, et al., 2016; Mattis, et al., 2016), where a total uncertainty of ~5-15% and ~10-25% is estimated, respectively. Therefore, the *LR* uncertainty is considered to fall in the range of 11-30%, while the *AE backscatter-* and *extinction-*related coefficients uncertainty ranges from 0.02 to 0.04 and 0.03 to 0.08, respectively.

Based on numerous simulations and comparisons of inversion with Aerosol Robotic Network (AERONET; https://aeronet.gsfc.nasa.gov/) observations, we estimated the uncertainty of particle Vc and reff to be below 25%. For the *n* parameter, this uncertainty was  $\pm 0.05$ , while for the *k* parameter the uncertainty was approximately 50%.

# 3.5. Optical Properties of Various Aerosol Types Observed over the EARLINET Lidar Site of Athens, Greece (2014-2019)

Apart from aforementioned aerosol categories, other aerosol types were observed over Athens as well. In Table 18 we present the aerosol layers' typing, whereas in Table 9 we present the mean intensive optical properties of these aerosol types.

**Table 9.** Mean intensive optical properties of the aerosol layers observed over Athens, Greece, by the EOLE lidar system, during 2014-2019 (Mylonaki, et al., 2023a).

Optical Property	Continental polluted	Continental Polluted+Marine	Dust	Dust mixtures
Number of layers	10	6	3	11
LR355 [nm]	53±12	57±7	56±22	48±10
LR532 [nm]	63±20	57±9	59±18	41±9
ΑΕβ355/β532	1.5±0.3	0.9±0.2	-0.4±0.5	0.5±0.3

Significant differences in the aerosol intensive optical properties were observed between the different aerosol types reflecting their aerosol type. Firstly, both *continental polluted* and *dust* aerosol types present higher  $LR_{532}$  (63±20 and 59±18, respectively) than  $LR_{355}$  mean values (53±12 and 56±22, respectively), also discussed by Mylonaki et al., (2021a) and Soupiona et al., (2020b). Secondly, the *continental polluted*  $AE\beta355/\beta532$  mean value (1.5±0.3) is indicative of small-sized aerosols, whereas the other aerosol types presented small  $AE\beta355/\beta532$  mean values (<0.5) indicating that the large aerosols were predominant in these aerosol layers. Last but not least, the *dust* aerosol category presented negative  $AE\beta355/\beta532$  mean value (-0.4±0.5).

Summarizing all the above for completeness:

### 3.5.1. CONTINENTAL POLLUTED (CP) AEROSOLS

Aerosol layers classified as *continental polluted* presented medium  $LR_{355}$  (53±12 sr) and  $LR_{532}$  values (63±20 sr) and medium  $AE\beta 355/\beta 532$  values (1.5±0.3). These are also in accordance with those reported in previous studies concerning this aerosol type (Burton, et al., 2013; Giannakaki, et al., 2010; Groß, et al., 2013; Mattis, et al., 2008; Müller, et al., 2007; Mylonaki, et al., 2021a).

### 3.5.2. CONTINENTAL POLLUTED AND MARINE (CP+M) AEROSOLS

The *continental polluted and marine* mixture showed medium to high  $LR_{355}$  (57±7 sr), and  $LR_{532}$  values (57±9 sr) and low  $AE\beta 355/\beta 532$  values (0.9±0.2). The low  $AE\beta 355/\beta 532$  values are indicative of coarse-mode aerosols such as marine, while the increased  $LR_{532}$  values are more indicative of *continental polluted* rather than *marine* aerosols.

### 3.5.3. DUST (D) AEROSOLS

The *dust* aerosol category showed medium  $LR_{355}$  (56±22) and  $LR_{532}$  (59±18) mean values with the latter to be the larger of the two. Also, the  $AE\beta 355/\beta 532$  mean value was negative (-0.4±0.5).

### 3.5.4. MIXED DUST (MD) AEROSOLS

Last but not least, the *dust mixtures* showed medium to low  $LR_{355}$  (48±10 sr) and  $LR_{532}$  values (41±9 sr), and small  $AE\beta 355/\beta 532$  values (0.5±0.3), indicating large aerosol particles.

# 3.6. REGIONAL DIRECT RADIATIVE EFFECTS OF VARIOUS AEROSOL TYPES OBSERVED OVER A TYPICAL MEDITERRANEAN LIDAR SITE (2014-2019)

Concerning the radiative effects of the aforementioned aerosols, in Table 19 we present the SZA and AOD values of the aerosol layers observed over Athens, Greece by the EOLE lidar system during the time period 2014-2019.

The most frequently observed aerosol layers during daytime lidar measurements over Athens were of *dust* origin and *dust mixtures* (Figure 46; olive and yellow slices of the pie chart, respectively). The remaining aerosol layers were of *continental polluted* origin and *continental polluted mixtures* (Figure 46; variations of blue slices of the pie chart, starting from the darker and ending to the lighter).



**Figure 46.** Frequency of the aerosol type observations over Athens, Greece by the EOLE lidar system during daytime lidar measurements (2014-2019) (Mylonaki, et al., 2023a).

A new parameter is introduced, the effective DRE, as

$$effective DRE = \frac{DRE}{AOD*SZA}$$
(17)

in Wm<sup>-2</sup> per unit AOD and SZA, to effectively assess the aerosol type's contribution to the *DRE*. In this way, any differences in the *effective DRE* parameter between the different aerosol types are attributed to the assumed SSA value for each aerosol type within the Libradtran model. The results are presented in Figure 47 for the TOA and the SRF separately (Figure 47a and b, respectively).



**Figure 47.** Direct radiative effect per unit of aerosol optical depth (AOD) and unit of solar zenith angle (SZA) (called here 'effective DRE') caused by the aerosol layers observed over Athens, Greece during daytime lidar measurements and under cloud-free conditions by the EOLE lidar system (2014-2019) (filled dots). For each aerosol type (different colloring), the mean value of 'effective DRE' is also given (empty dots). a) 'effective DRE' at the top of the atmosphere (TOA), b) 'effective DRE' at the Earth's surface (SRF). The different aerosol types are expressed by different SSA values within Libradtran: continental polluted and continental polluted mixtures-SSA=0.94, dust-SSA=0.96, mixed dust-SSA=0.95 (Mylonaki, et al., 2023a).

It is evident that the SSA's choice (0.94 for the continental polluted aerosols and mixtures and 0.96 for the dust aerosols and mixtures) affected the *DRE* both at TOA (Figure 47a) and at the SRF (Figure 47b). Specifically, *continental polluted* aerosols (Figure 47, blue color) presented the smaller (in absolute values) contribution to the *DRE* both at the TOA and at the SRF (-4.6±1.4 and -7.4±2.2 Wm<sup>-2</sup> per unit of AOD and SZA, respectively) compared to the *dust* ones (Figure 47, purple color) which showed the larger contribution to the *DRE* over Athens (-10.6±3.1 and -18.9±7.5 Wm<sup>-2</sup> per unit of AOD and SZA, respectively). The aerosol mixtures (red, yellow and green colors) contribution to the *DRE* over Athens was intermediate to the *continental polluted* and *dust* one.

**Table 10.** Mean values of the AOD, effective DRE, DRE and HR parameters resulted from the aerosol layers' presence in the atmosphere over Athens, within the time period 2014-2019. DRE is given in  $Wm^2$  whereas the effectibe DRE in  $Wm^2$  per unit of AOD and SZA. The HR is given in Kday<sup>-1</sup> (Mylonaki, et al., 2023a).

	Continental polluted	Continental polluted+Marine	Continental polluted+Smoke	Dust	Mixed dust
AOD	0.036±0.026	0.029±0.007	0.078±0.002	0.130±0.060	0.070±0.031
eff. DRETOA	-4.6±1.4	-5.6±1.8	-7.3±1.6	-10.6±3.1	-6.7±2.1
eff. DREsrf	-7.4±2.2	-13.8±5.6	-13.5±1.6	-18.9±7.5	-10.69±5.4
DRETOA	-10.3±10.6	-7.1±3.7	-28.1±9.9	-40.4±31.1	-22.7±11.6
DRESRF	-15.9±13.9	-14.4±5.3	-51.2±13.1	-72.2±58.3	-33.7±16.1
HR <sub>TOA</sub>	0.13±0.48	-0.34±0.65	-0.13±0.14	0.03±0.61	-0.06±0.39
HR <sub>SRF</sub>	-0.05±0.06	-0.03±0.02	-0.13±0.05	-0.17±0.15	-0.11±0.07

The mean *DRE* and *HR* values, both at the TOA and at the SRF are presented in Table 10. The mean *dust DRE*<sub>TOA</sub>, *DRE*<sub>SRF</sub> and *HR*<sub>SRF</sub> were larger in absolute values (-40.4 $\pm$ 31.1, -72.2 $\pm$ 58.3 and -0.17 $\pm$ 0.15 Wm<sup>-2</sup>) compared to the *continental polluted* (-10.3 $\pm$ 10.6, -15.9 $\pm$ 13.9 and -0.05 $\pm$ 0.06) and *continental polluted mixtures* (-7.1 $\pm$ 3.7, -76

14.4 $\pm$ 5.3 and -0.03 $\pm$ 0.02) ones, attributed to their larger *AOD* mean value (0.130 $\pm$ 0.094). However, all aerosol types presented negative effect to the *DRE* and HR at the SRF enhancing the opinion that aerosols present in the lower atmosphere are opposing the *greenhouse effect* caused by the atmospheric gases.

On the other hand, the SZA effects on the DRE are more complex. In reality, the SZA presents both diurnal and annual variations. The SZA variations for the location of NTUA (37.96°N, 23.78°E) during 2022 are shown in Figure 48. The smaller diagram in the right hand side down of Figure 48 shows the diurnal SZA variations for the case of 01 January 2022. Thus, an aerosol layer's effect on the DRE and HR parameters is variable depending on its observation date and time.



Figure 48. Annual and diurnal (small plot to the right) SZA variation for the location of National Technical University of Athens (37.96°N, 23.78°E). The diurnal SZA variations refers to the 01 January 2022 (Mylonaki, et al., 2023a).

In Figure 49 and Figure 50 we present the annual and diurnal aerosol types' effects on the DRE and the HR parameters, respectively, under different SZA conditions, assuming a constant AOD value for each aerosol type. Notice also that the lack of solar radiation during nighttime was not considered. The curves' depth in Figure 49 and Figure 50 denotes the diurnal DRE variations, while the difference between the smaller DRE value at the beginning and the end of the year and the larger value in July expresses the annual DRE variations. For example, a *dust* layer (SSA=0.96, AOD=0.130) whould have a DRE of -100 Wm<sup>-2</sup> at the TOA if observed at the beginning of the year at noon, -200 Wm<sup>-2</sup> at the TOA if observed the same date at midnight and -40 Wm<sup>-2</sup> at the TOA if observed in the middle of July at noon. Thus, the diurnal SZA variations cause larger DRE effect compared to the annual ones.



**Figure 49.** Annual and diurnal variations of the Direct Radiative Effect (DRE) caused by free-tropospheric aerosol layers of a) continental polluted (AOD=0.036), b) continental polluted and marine (AOD=0.029), c) continental polluted and smoke (AOD=0.076), d) dust (AOD=0.130), e) mixed dust (AOD=0.070) origin at the top of the atmosphere (TOA) under the different SZA conditions. The different aerosol types are expressed by different SSA values within Libradtran: continental polluted and continental polluted mixtures-SSA=0.94, dust-SSA=0.96, mixed dust-SSA=0.95 (Mylonaki, et al., 2023a).



**Figure 50.** Annual and diurnal variations of the Direct Radiative Effect (DRE) caused by free-tropospheric aerosol layers of a) continental polluted (AOD=0.036), b) continental polluted and marine (AOD=0.029), c) continental polluted and smoke (AOD=0.078), d) dust (AOD=0.130), e) mixed dust (AOD=0.070) origin at the surface (SRF) under the different SZA conditions. The different aerosol types are expressed by different SSA values within Libradtran: continental polluted and continental polluted mixtures-SSA=0.94, dust-SSA=0.96, mixed dust-SSA=0.95 (Mylonaki, et al., 2023a).

# 3.7. REGIONAL DIRECT RADIATIVE EFFECTS OF AN EXTREME CASE OF WILDFIRE SMOKE FROM THE LONG-LASTING GREEK WILDFIRES IN AUGUST 2021

Additionally, we present the effects of naturally emitted smoke aerosols from one extreme wildfire episode occurred in Greece in August 2021 and captured by the CALIPSO overpass in 8 of the same month.

In Figure 51 we present the  $\alpha_{aer,532}$  (black) and the vertical distribution of the *HR* (red) from the ground up to 5 km height of this aerosol layer, assuming that the aerosol layer was observed at 14:00 UTC (minimum SZA). The aerosol layer was evident within the height range 0.5-1.5 km, where the  $\alpha_{aer}$  parameter took its highest value (~800 Mm<sup>-1</sup>). This aerosol layer, which according to CALIPSO typing (Figure 28b) consisted of *smoke* aerosols, impacted the atmospheric temperature in the vertical descripted by the *HR*. Specifically, under the aerosol layer's bottom negative *HR* values were observed (-0.5 Kd<sup>-1</sup>) showing that less radiation reached the ground compared to that if the aerosol layer was not present, which is 5 times larger than the mean one caused by the aerosol layers observed over Athens. Gradually, the *HR* increased with height and it took its maximum (6 Kd<sup>-1</sup>) at approximately 1 km over the aerosol layer's top showing that its interaction with radiation (scattering and absorbtion) increased the temperature at the height where it was observed by 4.5 Kd<sup>-1</sup> within its boundaries.



**Figure 51.** Vertical distribution of the extinction coefficient derived by the CALIPSO lidar data processing for the CALIPSO overpass over Greece, in 8 August 2021, 01:15:10. UTC (black axes). Vertical distribution of the net heating rate resulted from the presence of the same layer (red axes) (Mylonaki, et al., 2023a).

This layer caused a DRE of -222(-101)  $\text{Wm}^{-2}$  at the SRF(TOA). However, its *effective DRE* was -12(-5)  $\text{Wm}^{-2}$  per *AOD* unit and *SZA* unit at the SRF(TOA), which compared to those retrieved in the previous study and especially the *dust* one, is rather small, showing that a *dust* aerosol layer with the same *AOD* value observed over the same area at this time and date of the year, would result in an even larger *DRE* at the SRF and the TOA.

# 3.8. WILDFIRE SMOKE AND SAHARA DUST AEROSOL'S OXIDATIVE POTENTIAL, EXPOSURE AND DOSE

### 3.8.1. POLLUTANTS MASS CONCENTRATIONS

The shaded areas in Figure 52 demonstrate the time-periods of August 2021 when  $PM_{10}$ ,  $PM_{2.5}$ ,  $PM_1$  and/or OC and EC mass concentrations (Figure 52a, colored lines) exceeded the corresponding annual or monthly mean values (Figure 52a, colored circles) of August 2013 (Amato, et al., 2016; Diapouli, et al., 2017), as well as the

WHO (Figure 52a, dashed lines) and EU (Figure 52a, dotted lines) air quality standards. Figure 52b provides the same information as Figure 52a, but for the ratios  $PM_{2.5}/PM_{10}$  (red line) and  $PM_1/PM_{10}$  (blue line), which when they are closer to unity they reveal the prevalence of finer aerosols, such as the biomass burning ones, while when closer to zero they denote the prevalence of coarse-mode particles, such as dust.



**Figure 52.** a) Mass concentration ( $\mu$ g m<sup>-3</sup>) of PM<sub>1</sub>, PM<sub>2.5</sub>, PM<sub>10</sub>, OC and EC (colored solid lines), the corresponding annual or monthly mean values (colored circles), and the corresponding WHO (dashed lines) and EU air quality standards (dotted lines). b) PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub> and PM<sub>1</sub>/PM<sub>10</sub> ratios (thick colored lines) and annual mean ratio value of background and dust cases (colored circles and squares). All data were measured at the DEM station, in the time period 1-18 August 2021. The shaded areas represent the time periods when the PMs surpassed their annual or monthly mean values (Mylonaki, et al., 2023b).

The PMs mass concentrations surpass their annual or monthly means during five separate time-periods (Figure 52a shaded areas), over the whole first half of August 2021, exhibiting the times when long-range transport of dust or forest fire emissions reach the observational site. Specifically, and with respect to Figure 54, the time period 1-3 of August is characterized by dust aerosols, the time period 4-5 of August by dust mixed with smoke aerosols, while the days 7, 10 and 18 are characterized by smoke aerosols from the wildfires occurred at the northern part of Evia island and the Attica Basin. Apart from these time-periods, biomass burning aerosols may have been transported over Athens during other days within the time-period 1-18 of August as well, as the ratio of PM in Figure 52b suggests for the first hours of August 8. Thus, the unmarked time-periods within the time-period 1-18 of August represent the PM background levels of the DEM site, which are may be affected by the transported pollution from the urban area of Athens and aged smoke aerosols from other areas (Eleftheriadis, et al., 2021) and, partially by the remaining smoke aerosols during the smoke events.

Other than that, the OC and EC mean mass concentration values are larger during the smoke time-periods (~14  $\mu$ g m<sup>-3</sup> and ~2  $\mu$ g m<sup>-3</sup> for OC and EC, respectively; Table 11), compared to the other two ones [(mixed) ~6  $\mu$ g m<sup>-3</sup> and ~1  $\mu$ g m<sup>-3</sup>, (dust) ~4  $\mu$ g m<sup>-3</sup> and 1  $\mu$ g m<sup>-3</sup>, for OC and EC, respectively; Table 11)], as well as compared to the background ones which show the smaller mean values (~3  $\mu$ g m<sup>-3</sup> and ~0.3  $\mu$ g m<sup>-3</sup>, for OC and EC, respectively: Table 11). The mixed dust period shows mean mass concentration values (~6  $\mu$ g m<sup>-3</sup> and ~1  $\mu$ g m<sup>-3</sup>, for OC and EC, respectively: Table 11). The mixed function of dust (~4  $\mu$ g m<sup>-3</sup> and ~1  $\mu$ g m<sup>-3</sup>, for OC and EC, respectively: Table 11) intermediate to those of dust (~4  $\mu$ g m<sup>-3</sup> and ~1  $\mu$ g m<sup>-3</sup>, for OC and EC, respectively: Table 11) and smoke ones.

The transport of dust from the Sahara towards Italy and Greece is evident for 1-3 August 2021, as seen from the NMME-DREAM simulation in Figure 53.**Figure 53**. Dust Optical Depth (DOD) as represented by the NMME-DREAM model at 12:00 UTC on 1 August 2021 (top), 2 August 2021 (middle) and 3 August 2021 (bottom) (Mylonaki, et al., 2023b).



**Figure 53**. Dust Optical Depth (DOD) as represented by the NMME-DREAM model at 12:00 UTC on 1 August 2021 (top), 2 August 2021 (middle) and 3 August 2021 (bottom) (Mylonaki, et al., 2023b).

Additionally, the origin of air masses for the four dates when the PM exceedances are observed (Figure 52), namely on 4, 7, 10 and 18 August 2021, is shown in Figure 54 at 6-hour intervals. As seen in this Figure (Figure 54), the DEM station is affected by both local aerosol sources and long-range transport of particles from the areas of Attica and Evia. More specifically, on 4, 7 and 18 of August, the station was affected mainly by sources in the northern sector of the Attika basin, assuming the transport of smoke from Evia wildfires and the forest fires inside the Attica basin. On 10 August, more stagnant meteorological conditions were prevailing. Thus, the air masses detected at the DEM station are expected to contain smoke particles emitted by smoldering fires in the northern part of the Attika basin, not visible in Figure 54 due to their low temperatures.



**Figure 54.** Emission sensitivity (log  $[sm^3 kg^{-1}]$ ) of the air masses arriving at the DEM station on 4,7,10 and 18 August 2021. Each release represents a 6-hour interval (00:00, 06:00, 12:00, 18:00, 23:59) and the tracers are tracked backward for 24 hours. The air mass source is the 0-5 km tropospheric layer, and the air mass receptor is the station surface (37.99°N, 23.82° E, 275 m a.m.s.l.). The red dot denotes the location of the station. (Mylonaki, et al., 2023b)

Table 11. Mean values of the various parameters showed in this study for dust, mixed, smoke and anthropogenic aerosol types. (Mylonaki, et al., 2023b)

20230)					
		Dust	Dust mixed with smoke	Smoke	Background August 2021
	PM <sub>10</sub>	40.62±6.95	40.75±8.99	36.46±19.07	8.89±3.64
	PM <sub>2.5</sub>	15.53±2.69	17.51±6.57	28.36±16.59	5.90±2.45
	$\mathbf{PM}_{1}$	11.0±3.75	12.33±7.31	21.11±18.44	5.13±2.57
	PM <sub>2.5</sub> /PM <sub>10</sub>	0.39±0.07	$0.42 \pm 0.06$	0.76±0.10	$0.67 \pm 0.08$
	$PM_1/PM_{10}$	0.29±0.07	0.33±0.07	0.73±0.11	0.62±0.09

	OC	4.14±1.06	6.06±2.49	14.39±5.49	3.34±1.23
	EC	0.65±0.27	1.00±0.42	1.76±0.93	0.37±0.23
PMs Mass Deposition	Dose Rates (µg h <sup>-1</sup> )				
ExDoM2	к=0	45.11±11.00	42.94±7.03	20.98±10.71	6.29±2.99
	к=0.3	48.95±11.27	47.04±7.95	26.97±12.95	7.65±3.31
RETRAC	β=0	48.09±10.55	45.21±7.40	25.49±12.62	7.44±3.29
	β=0.1	49.62±11.11	47.21±7.44	24.47±11.87	7.49±3.35
	β=0.3	52.06±11.73	49.81±7.76	25.61±13.00	7.82±3.49
	β=0.5	57.06±12.72	54.26±8.35	27.49±13.33	8.51±3.75
	β=0.7	61.91±13.79	58.88±9.00	29.59±13.82	9.24±4.03
	β=0.9	66.82±14.79	63.52±9.71	31.96±14.80	10.00±4.32
MPPD		47.47±12.48	43.38±8.33	20.98±5.66	6.64±3.02
OC Total Mass Depos	sition Dose Rates (µg h <sup>-1</sup> )	)			
ExDoM2	к=0	2.83±0.55	3.77±1.11	4.64±1.81	1.34±0.41
	к=0.3	3.68±0.69	4.96±1.47	7.72±1.81	2.06±0.66
RETRAC	β=0	3.10±0.64	4.58±1.39	7.40±2.85	1.91±0.69
	β=0.5	4.31±0.77	5.69±1.57	7.86±3.10	2.14±0.76
MPPD		1.82±0.76	2.18±0.93	5.30±1.94	1.24±0.42
OP Total Mass Depos	ition Dose Rates (pmol r	$\min^{-1} h^{-1}$ )			
ExDoM2	к=0	-	648.89±216.03	400.08±78.74	258.01±83.90
	к=0.3	-	710.24±236.75	494.48±84.49	316.55±97.11
RETRAC	β=0	-	689.85±229.95	476.27±69.17	306.46±92.74
	β=0.1	-	708.78±236.26	464.47±64.48	307.40±93.61
	β=0.3	-	747.47±249.16	487.96±63.60	321.52±98.59
	β=0.5	-	814.20±271.40	524.41±75.65	351.11±109.04
	β=0.7	-	826.10±294.51	562.96±89.67	382.37±119.86
	β=0.9	-	953.79±317.93	607.37±98.39	414.53±131.33
MPPD		-	650.76±216.92	415.28±99.17	269.18±86.60
OP <sup>DTTv</sup> (nmol min <sup>-1</sup> m	-3)				
		-	0.08	0.22±0.02	0.06±0.02
OP <sup>DTTm</sup> (pmol min <sup>-1</sup> h	-1)				

### 3.8.2. AEROSOL DEPOSITION RATES

The human RT is commonly divided into three major compartments (ICRP, 1994): (i) the extrathoracic (ET) region, extending from the nose or the mouth to the entrance of the trachea, (ii) the tracheobronchial (TB) region, ranging from the trachea to the terminal bronchioles, and (iii) the acinar (A) or alveolar-interstitial (AI) or pulmonary (P) region, where gas exchange takes place between air and blood via the alveoli. Morphometric lung models always refer to the lung [thoracic region (TH)], consisting of the TB and Al compartments, while the ET region is considered merely as a filter, which determines the fraction of particles actually reaching the lung.

The total (ET+TB+Al) deposition dose rates of PM into the human RT, for the time period 1-18 of August 2021, for hydrophobic (colored solid lines) and hygroscopic particles (colored dashed lines), using RETRAC (blue), ExDoM2 (green) and MPPD (red) dosimetry models are presented in Figure 55a. The shaded areas are as introduced in Figure 52a. The regional mass deposition rate for each aerosol type and dosimetry model is presented in Figure 55b, taking into account the aerosol hygroscopicity ( $\kappa$ =0.3) or not ( $\kappa$ =0) and assuming different particle growth ( $\beta$ ) values (0 for dry and 0.1, 0.3, 0.5, 0.7, 0.9 for hydroscopic particles). The percentages refer to the mean values of the total mass deposition rates of each aerosol category (see Table 11).



**Figure 55.** a) Total mass deposition rate ( $\mu$ g h<sup>-1</sup>) of PM, for hydrophobic (colored solid lines) and hygroscopic particles (colored dashed lines) resulted from the three different dosimetry models. b) Regional mass deposition rate (%) for (1) dust, (2) mixed, (3) smoke aerosol types assuming hydrophobic (dry) or hygroscopic particles ( $\kappa$ =0.3), resulted from the three different dosimetry models. The percentages refer to the mean values of the total mass deposition rates of each aerosol category (Table 12). All data were measured at the DEM station, in the time period 1-18 August 2021. The shaded areas represent the time periods when the PMs surpassed their annual or monthly mean values (Mylonaki, et al., 2023b).

Overall, the total mass deposition rates (Figure 55a) are following the trends of the PM mass concentration distributions (Figure 52a). For example, the total mass deposition rates of all models (Figure 55a) are larger during the dust and mixed time-periods (up to 90  $\mu$ g h<sup>-1</sup>) and lower during the smoke time-periods (<40  $\mu$ g h<sup>-1</sup>). This highlights the PM mass concentration role in the aerosol deposition into the human RT. Furthermore, a positive correlation between the values of particle growth ( $\beta$  parameter assumed within RETRAC) and the total mass deposition dose rates in the RT is observed suggesting that the larger the values of  $\beta$  (i.e., 0.9 compared to

0.1) the larger the total mass deposition rates (i.e., light blue dashed lines compared to dark blue dashed lines; Figure 55a), confirming the findings of Mitsakou et al. (2005, 2007).

On the other hand, larger fraction of smoke aerosols (20%-45%), depending on the  $\beta$  parameter, deposit deeper in the human RT per hour (Figure 55b3, blue columns), than that of the dust and mixed ones (<20%; Figure 55b1, blue columns). This is, most probably, attributed to coarse aerosols' size, which deposit, mainly, in the ET region, while fine particles penetrate easier in the AI region (Hinds, et al., 1999). At the same time, smaller fractions of hygroscopic smoke particles (<40%) is deposited in the thoracic area (Figure 55b3, blue columns,  $\kappa$ =0.3,  $\beta$ ≠0), compared to the hydrophobic ones (~40%; Figure 55b3, blue columns,  $\kappa$ =0,  $\beta$ =0), predicted by RETRAC simulations, most likely due to the equivalent increase in their size, favoring the inertial impaction into the ET than the sedimentation and Brownian diffusion in the Al. On the other hand, while the RETRAC predictions follow the 'increased hygroscopicity-decreased deposition in the thoracic area' trend, both, for dust and mixed aerosol types (Figure 55b1 and 2, respectively), as indicated by Asgharian, (2004), this is not the case for the ExDoM2 predictions for these aerosol types. The ExDoM2 predictions for dust and mixed aerosol types (Figure 55b1 and 2, respectively) show a proportional increase of the deposition rate into the thoracic area with the increase of the hygroscopicity, revealing a discrepancy between the models concerning the regional deposition in the human RT. Dust and mixed deposition fractions to the lower RT are almost the same due to the dust prevalence into the mixed aerosol layers.

Accordingly, Figure 56 presents the same parameters as Figure 55, taking, this time, into consideration the OC mass concentrations and assuming only the particle growth represented by the value  $\beta$ =0.5 within RETRAC.



**Figure 56.** a) Total mass deposition rate ( $\mu$ g h<sup>-1</sup>) of OC, for hydrophobic (colored solid lines) and hygroscopic particles (colored dashed lines) resulted from the three different dosimetry models used in this study. b) Regional mass deposition rate (%) for (1) dust, (2) mixed and (3) smoke aerosol types assuming hydrophobic (dry) or hygroscopic particles ( $\kappa$ =0.3) and different values of particle growth ( $\beta$ ), resulted from the three different dosimetry models used in this study. The percentages refer to the mean values of the total mass deposition rates of each aerosol category (Table 12). All data were measured at the DEM station, in the time period 1-18 August 2021. The shaded areas represent the time periods when the PMs surpassed their annual or monthly mean values (Mylonaki, et al., 2023b).

Generally, the results presented in Figure 56 are similar to those shown in Figure 55. For example, as previously noted, when the OC mass concentrations are larger (Figure 52a), so are the OC total mass deposition rates Figure 56a), receiving their larger values during smoke events (>6  $\mu$ g h<sup>-1</sup>). At the same time, larger smoke deposition fractions (Figure 56b) are observed in the thoracic area (>40%) compared to those obtained during dust and

mixed cases (<40%). Furthermore, the OC mass deposition fractions of all aerosol types in the thoracic area are greater (>20%, >20% and >40% for dust, mixed and smoke aerosol types, respectively) compared to the corresponding PM ones (<20%, <20% and 20-40% for dust, mixed and smoke aerosol types, respectively; Figure 55b). This finding reveals the aerosol's chemical composition role in the aerosol deposition into the human RT. Therefore, the role of the OC particles has to be accounted for, when estimating the deposition of aerosols into the RT.

#### 3.8.3. COMPARISON BETWEEN THE DOSIMETRY MODELS

The discrepancies between the dosimetry models (a-b-c) under different hygroscopicity ( $\kappa$ ) and particle growth ( $\beta$ ) values (different coloration), within the ±10%, ±20% and ±50% range (colored areas) for the total (1), the ET (2) and the TH (3) deposition rates in the RT are presented in Figure 57. The solid lines correspond to the fitting on the set of estimations from the pair of two deposition models of each comparison.

Overall, the agreement between the studied models can be considered good, following the results of Hofmann, et al. (2011). In fact, the discrepancies between the comparisons MPPD-ExDoM2 and MPPD-RETRAC (Figure 57b and c, respectively) concerning the total (1) and the mass deposition rates in the ET region (2) are <10%, which is, also, the case for the comparison RETRAC-ExDoM2 ( $\kappa$ =0,  $\beta$ =0: blue line; Figure 57a) concerning the mass deposition rates deposited in the TH region (3). Additionally, the agreement between the comparisons MPPD-ExDoM2 (Figure 57b) and MPPD-RETRAC (Figure 57c) concerning the mass deposition rates in the ET (2) and the TH (3) regions is also good, with the discrepancies to, hardly, exceed the 20%, which is also the case for the comparisons RETRAC-ExDoM2 ( $\kappa$ =0,  $\beta$ =0: blue line; Figure 57a) concerning the total mass deposition rates (1), those deposited in the ET region (2) and those deposited in the TH region (3).



**Figure 57.** Comparison between the (a) RETRAC-ExDoM2, (b) MPPD- ExDoM2 and (c) MPPD-RETRAC Particulate Matter (PM) (1) total mass deposition rates ( $\mu$ g h<sup>-1</sup>), (2) mass deposition rates in the extrathoracic region ( $\mu$ g h<sup>-1</sup>) and (3) in the thoracic region of the respiratory tract assuming dry ( $\kappa$ =0,  $\beta$ =0) or hygroscopic particles ( $\kappa$ =0.3) and different values of particle growth ( $\beta$ ). All data were measured at the DEM station, in the time period 1-18 August 2021 (Mylonaki, et al., 2023b).

Furthermore, when the hygroscopicity and particle growth parameters are considered the ExDoM2 estimations for the case of the total mass deposition rates (Figure 57a1) and the mass deposition rates in the ET region (Figure 57a2) correlate better (>90% correlation) with the RETRAC ( $\beta$ =0.1) estimations (red line) showing small particle growth under  $\kappa$ =0.3 hygroscopicity conditions. However, the discrepancies between the aforementioned comparisons fall within the 50% discrepancy line, regardless of the  $\beta$  parameter considered in the RETRAC model.

Finally, the discrepancies of the ExDoM2 and RETRAC simulations for the mass deposition rates in the TH region (Figure 57a3) are >50%, showing that RETRAC underestimate the mass deposition rates compared to the corresponding ExDoM2's ones. Similarly, MPPD seems to underestimate the mass deposition rates in the TH area compared to the other two deposition models. A comparison between ExDoM2 and RETRAC considering different aerosol types would result into a different outcome given that aerosol types associated with different hygroscopicity values, thus with different particle growth rates.

### 3.8.4. AIR-VOLUME- (OPDTTV) AND MASS-NORMALIZED (OPDTTM) OP

Apart from the mass concentration-health risk relationship presented in Section 2.1, another important parameter that should be considered when evaluating health risks of PM exposure is its OP.



**Figure 58.** a) Mass- and volume-normalized oxidative potential (OP) from the dithiothreitol assay (DTT) protocol analysis. b) Pearson's correlation between mass concentration of 1) OC and volume-normalized OP, 2) EC and volume-normalized OP and 3)  $PM_{2.5}$  and mass-normalized. All data were measured at the DEM station, in the time period 1-18 August 2021. The shaded areas represent the time periods when the PMs surpassed their annual or monthly mean values (Mylonaki, et al., 2023b).

The aerosol OP per day (Figure 58a), between 5 and 18 of August 2021, as well as the Pearson's correlation (Figure 58b) between the mass concentration of 1) OC and volume-normalized OP ( $OP^{DTTv}$ ), 2) EC and volume-normalized  $OP^{DTTv}$  and 3) PM<sub>2.5</sub> and mass-normalized OP ( $OP^{DTTm}$ ) are discussed. The shaded areas in Figure 58a demonstrate the time-periods of August 2021 when PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>, PM<sub>1</sub> and/or OC and EC mass concentrations (Figure 52a, colored lines) exceeded the corresponding annual or monthly mean values, as well as the WHO (Figure 52a, dashed lines) and EU (Figure 52a, dotted lines) air quality standards. However, the OP samples come with a 24-h temporal resolution, while the selected time-periods (Figure 52-56a) and the

corresponding aerosol types (dust, mixed, smoke) refer to only a few hours within a day. Thus, here, the OP parameter is associated always to mixtures of the aforementioned aerosols with anthropogenic, traffic related ones.

Thus, higher  $OP^{DTTv}$  (>0.2 nmol min<sup>-1</sup> m<sup>-3</sup>) values are observed on 7 and 18 of August (Figure 58a), characterized as smoke aerosols, compared to the one observed on 5 of August (Figure 58; 0.08±0.03 nmol min<sup>-1</sup> m<sup>-3</sup>), characterized as mixture of dust with smoke aerosols, as well as, to the background aerosol category (Figure 58a unshaded areas; <0.07 nmol min<sup>-1</sup> m<sup>-3</sup>), revealing a correlation between the larger OC and EC smoke mass concentrations and  $OP^{DTTv}$ . Indeed, the OC and EC mass concentrations are positively correlated with  $OP^{DTTv}$  (Pearson's correlation factor: R=0.86, R=0.73, respectively; Figure 58b1 and 2, respectively).

On the opposite direction, the lowest  $OP^{DTTm}$  value is observed on 5 of August (Figure 58a; ~14 pmol min<sup>-1</sup> µg<sup>-1</sup>) when dust mixed with smoke are observed, while higher values are observed for the background aerosols (Figure 58a unshaded areas; >40 pmol min<sup>-1</sup> µg<sup>-1</sup>). Thus, the negative correlation of  $OP^{DTTm}$  with  $PM_{2.5}$  mass concentrations (Pearson's factor R=-0.68) reveals that even for low mass numbers (Figure 58a unshaded areas), background aerosols.



Figure 59. Mass-normalized OPDTT reported in the literature and in this study for various aerosol types (Mylonaki, et al., 2023b).

Up to now, the studies dealt with Organic Aerosols (OA)  $OP^{DTTm}$  (Verma, et al., 2009; Saffari, et al., 2016; Chirizzi, et al., 2017; Wong, et al., 2019) have attributed its higher values to secondary processes, supporting the role of photochemistry in creating redox-active organic compounds. Moreover, ozone-exposed BC exhibits a higher  $OP^{DTTm}$  than untreated BC, most likely due to the quinone formation from soot-bound PAH oxidation by ozone (Antiñolo, et al., 2015; Pant, et al., 2015). Thus, the high  $OP^{DTTm}$  value of smoke aerosols (31.75±2.20 pmol min<sup>-1</sup> µg<sup>-1</sup>) is rather affected here by the aerosols' atmospheric ageing and mixture with traffic-related aerosols rather than their mass concentration. However, this value is within the acceptable range (20-40 pmol min<sup>-1</sup> µg<sup>-1</sup>) indicated by the literature for the 5-68h (intermediate-aged) smoke (Wong, et al., 2019), wildfire smoke (Verma, et al., 2009), and generally fine mode aerosols (Bates, et al., 2019).

On the other hand, one of the few, to our knowledge, studies concerning the OP of Saharan dust aerosols, is that of Chirizzi et al. (2017), who compared the OP<sup>DTTv</sup> and OP<sup>DTTm</sup> values of African dust aerosols to those of high carbon content and concluded that the dust aerosols develop lower OP<sup>DTTv</sup> and OP<sup>DTTm</sup> values than the smoke ones (Figure 59), justifying the low OP<sup>DTTv</sup> and OP<sup>DTTm</sup> values of the 5<sup>th</sup> of August 2021 (0.08±0.03 nmol min<sup>-</sup>

<sup>1</sup> m<sup>-3</sup>, 13.88±2.31 pmol min<sup>-1</sup>  $\mu$ g<sup>-1</sup>, respectively), compared to the ones of 7 and 18 of August (0.22±0.02 nmol min<sup>-1</sup> m<sup>-3</sup> and 31.75±2.20 pmol min<sup>-1</sup>  $\mu$ g<sup>-1</sup>, respectively).

### 3.8.5. OP DOSE RATES

The OP dose rates in the whole RT (Figure 60a) and into the different compartments of the RT (Figure 60b) are calculated, when the total PM mass deposition rates are multiplied with  $OP^{DTTm}$  under various  $\kappa$  and  $\beta$  conditions. The OP samples have a temporal resolution of 24h, thus the OP deposition rates are provided with the same temporal resolution. The shaded areas in Figure 60a demonstrate the time-periods of August 2021 when PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>, PM<sub>1</sub> and/or OC and EC mass concentrations (Figure 52a, colored lines) exceeded the corresponding annual or monthly mean values, as well as the WHO (Figure 52a, dashed lines) and EU (Figure 52a, dotted lines) air quality standards. The percentages refer to the mean values of the total mass deposition rates of each aerosol category (Table 11).



**Figure 60**. a) OP deposition rate ( $\mu$ g h<sup>-1</sup>), for hydrophobic (colored solid lines) and hygroscopic particles (colored dashed lines) resulted from the three different dosimetry models used in this study. b) Regional deposition rate (%) for (1) mixed, (2) smoke, (3) background aerosol types assuming hydrophobic (dry) or hygroscopic particles ( $\kappa$ =0.3), resulted from the three different dosimetry models used in this study. The percentages refer to the mean values of the total mass deposition rates of each aerosol category (Table 12). All data were measured at the DEM station, in the time period 1-18 August 2021. The shaded areas represent the time periods when the PMs surpassed their annual or monthly mean values (Mylonaki, et al., 2023b).

According to Figure 60a, the increase in the total OP deposition rates is proportional to the increase of both the total PM mass deposition rates and the  $OP^{DTTm}$  values. Explicitly, even though the  $OP^{DTTm}$  values of the dust mixed with smoke and of the smoke aerosol types are lower (<32 pmol min<sup>-1</sup> h<sup>-1</sup>; Figure 60a shaded regions) compared to the background ones (>43 pmol min<sup>-1</sup> h<sup>-1</sup>; Figure 60 unshaded regions), the total OP deposition rates of these aerosol mixtures are higher (>400 pmol min<sup>-1</sup> h<sup>-1</sup>; Figure 60a shaded regions) compared to the background ones (<350 pmol min<sup>-1</sup> h<sup>-1</sup>; Figure 60a unshaded regions), due to the increase in the total PM mass deposition rates during the corresponding time-periods (Figure 55a; shaded areas). Thus, Figure 60a actually presents the aerosol category which poses the major risk for the human RT. In our case, this is the dust mixed with smoke category with no more than 1.6 times larger OP deposition rates in the whole RT than smoke aerosols.

At the same time, the fraction of smoke OP deposition in the TH region is higher (Figure 60b2 > 20%) than those of the mixed dust with smoke aerosol category (Figure 60b1 < 20%) and the background aerosols (Figure 60b3)

<20%). Thus, wildfire smoke aerosols if in high concentrations penetrate deeper in the human RT than dust and background aerosols and are almost equally toxic than dust aerosols in high concentrations.

# CHAPTER 4. CONCLUSIONS

In the fist part of this Thesis three independent aerosol classification methods: NATALI, MD and SCAN were compared characterizing 97 free-tropospheric aerosol layers observed over 4 EARLINET stations (Bucharest, Kuopio, Leipzig and Potenza) by multi-wavelength Raman lidar systems within the time period 2015-2018, providing their strengths and limitations. A difference of 48%, 57% and 60% between the results of NATALI and MD, MD and SCAN and NATALI and SCAN was reported. At the same time, it was found that Bucharest was affected by continental polluted (29%), smoke (14%) and mixtures of these aerosols (57%); Kuopio was affected by clean continental aerosols (33%) and mixtures of clean continental with marine or continental polluted aerosols (67%); Leipzig was affected by continental polluted aerosols (22%); Potenza was affected by continental polluted aerosols (24%) and mixtures of continental polluted with dust (22%), with marine (16%) and smoke aerosols (38%).

Furthermore, more than 600 free-tropospheric aerosol layers observed over the suburban site of the NTUA by the EOLE multi-wavelength lidar system during both daytime and nighttime lidar measurements were, also, characterized. Additionally, the typing of 65 aerosol layers permitted us to retrieve the optical properties (lidar ratio, Ångström exponent) of various aerosol types [continental polluted (16%), continental polluted mixed with marine (9%), dust or dust mixtures smoke aerosols excluded (22%), smoke (9%), smoke mixed either with continental polluted (16%) or with dust aerosols (28%)] observed over Athens. At the same time, the microphysical properties (effective radius, single scattering albedo, refractive index, volume concentration) of smoke aerosols and their mixtures (mixed either with continental polluted or with dust aerosols) observed over Athens within the time-period 2011-2019 were, also, retrieved.

In addition, 42 tropospheric aerosol layers observed over the city of Volos by the AIAS mobile depolarization lidar system during the PANACEA summer campaign in July 2019 were, also, characterized, providing typical values of the linear particle depolarization ratio of various aerosol types [continental polluted (40%), continental polluted mixed with marine (21%), smoke (26%), dust mixtures (12%)]. In this way, a robust database of mean optical properties of the most representative aerosol types observed over Europe, including the eastern Mediterranean region, was created (Table 21 of the Appendix).

Last but not least, we calculated the radiative effects of the differet aerosol types observed over Athens using the radiative transfer prediction model Libradtran, as well as of an extreme forest fire event occurred at the northern boarders of the Attika peninsula and at the northern part of the Evia island during the long-lasting Greek wildfires in August 2021. The regional atmospheric radiation perturbations caused by the presense of the aerosol layers over Athens ranged from -16 to -72 Wm<sup>-2</sup> at the surface and from -7 to -40 at the top of the atmosphere, depending on the layers' AOD value and the time of their observation. However, we should that the smoke emissions from the nearby wildfires could enhance these perturbations by almost 400% at the surface.

The systematic study of the vertical distributions of the aerosol optical properties by implementing ground-based and spaceborne lidar systems and other passive remote sensors (i.e. AERONET data) to retrieve their microphysical and chemical properties will enable a better estimation of the radiative effects of different aerosol types at regional or even global scale. Thus, further continuation of this Thesis would focus on the retrieval of the chemical properties of the various aerosol types observed over Europe and the eastern Mediterranean region to estimate their radiative effects at a continental scale using the aerosol optical and microphysical properties of each aerosol type provided by this Thesis. In this way, the aerosol optical, microphysical and chemical properties could be later used by the Libradtran model to estimate their direct radiative effecs in a larger scale, involving various lidar stations of the EARLINET network.

In 2<sup>nd</sup> Part of this Thesis, aerosol *in-situ* measurements of the wildfire emissions during August 2021 in the Attica peninsula and a dust intrusion earlier this month were fed to three aerosol deposition models (MPPD, RETRAC, ExDoM2). Different time-periods from 1 to 18 of August 2021 were studied, indicated by the PM, OC and EC mass concentrations exceedances of the respective EU an WHO air quality standards, when different aerosols were present: 'dust', 'dust mixed with smoke', 'smoke' time-periods.

The  $PM_{10}$  and OC total and regional mass dose rates were calculated for an adult Caucasian male's inspiratory system with light exercise during the aforementioned time-period. The total  $PM_{10}$  and OC mass deposition rates were highly affected by the  $PM_{10}$  and OC mass concentrations. At the same time, the dependence of the regional aerosols' deposition on their size was presented, with the smoke particles to deposit deeper in the RT, compared to the dust and mixed dust ones. Overall, the discrepancies between the studied models were <10% for total deposition rates and <20% for regional deposition rates except for the deposition rates in the TH area of the pair ExDoM2-RETRAC when hygroscopicity was considered.

Furthermore, the  $OP^{DTTv}$  and  $OP^{DTTm}$  were retrieved using the DTT analysis. The  $OP^{DTTv}$  dependence on the aerosol type was highlighted, specifically on OC and EC mass concentrations from wildfire emissions, with which it was positively correlated (Pearson's correlation factor R=0.86 and 0.73, respectively). Additionally, the 1) dust mixed with smoke, 2) smoke, 3) background OP deposition dose rates in the human RT were reported. Our study highlighted that the smoke emissions from the Greek wildfires of August 2021 posed approximately the same risk for the whole RT than that of the dust intrusion occurred earlier the same month and penetrated deeper in the RT even from the background aerosols.

Since our results highlighted the importance of considering the chemical composition of aerosols when estimating the regional deposition doses of aerosols in the human RT, further continuation of the present study would focus on the collection and characterization of different aerosol particles (dust, smoke, continental, etc.) with higher temporal (less than 1 hour) resolution. This is of particular importance in regions characterized by high dust (e.g. sub-Saharan and south western Asia) and smoke (in the vicinity with burning forest areas) particles to estimate the potential respiratory health effects. At the same time, chemical and hygroscopic properties should be, further, studied and considered in lung deposition assessment, as they may significantly change the deposited pattern of the inhaled aerosol.

# **Chapter 5.** Εκτένης Περιληψή

# 5.1. Εισαγωγή

Τα αιωρούμενα σωματίδια, γνωστά και ως αερολύματα, επηρεάζουν το ατμοσφαιρικό ισοζύγιο ακτινοβολίας της Γης απορροφώντας και σκεδάζοντας την ηλιακή (μικρού μήκους κύματος), αλλά και τη γήινη (θερμική) ακτινοβολία. Για παράδειγμα, τα αερολύματα που έχουν σκεδαστικές ικανότητες περιλαμβάνουν τα θειικά, τα νιτρικά και τα αμμωνιακά άλατα και τα θαλάσσια σωματίδια, ενώ τα αερολύματα τα οποία συνήθως απορροφούν την ηλιακή ακτινοβολία είναι κυρίως ο μαύρος άνθρακας. Επιπροσθέτως, τα αερολύματα επηρεάζουν το σγηματισμό νεφών και τη συμπεριφορά τους, λειτουργώντας ως πυρήνες συμπύκνωσης αυτών και ως πυρήνες πάγου, μέσω των οποίων σχηματίζονται σταγονίδια νεφών και κρύσταλλοι πάγου, επηρεάζοντας με αυτό τον τρόπο την σκεδαστικότητα και απορροφητικότητα των νεφών, και επομένως, με έμμεσο τρόπο το κλίμα. Οι διαδικασίες αλληλεπίδρασης αερολύματος-ακτινοβολίας και αερολύματος-νεφών εξαρτώνται από τα γεωμετρικά γαρακτηρισκά των αερολυμάτων και τις οπτικές, μικροφυσικές και γημικές ιδιότητές τους. Επομένως, η γνώση αυτών των χαρακτηριστηκών και ιδιοτήτων είναι σημαντική για τη μοντελοποίηση των επιπτώσεων των αερολυμάτων στο κλίμα. Λαμβάνοντας, επίσης, υπόψη ότι η περιοχή της Μεσογείου χαρακτηρίζεται από μεγάλη ηλιακή δραστηριότητα και ατμοσφαιρική μεταβλητότητα και, η μεταφορά αερολυμάτων που συνοδεύεται από διαδικασίες ατμοσφαιρικής γήρανσης και ανάμειξης, καθιστούν αυτήν την περιοχή ιδανική για τη μελέτη των επιπτώσεων των διάφορων ειδών αερολυμάτων στο ατμοσφαιρικό ισοζύγιο ακτινοβολίας στην περιοχή.

Τα αιωρούμενα σωματίδια εκπέμπονται είτε απευθείας από διάφορες επίγειες πηγές (πρωτογενή αερολύματα), είτε έμμεσα στην ατμόσφαιρα μέσω διαδικασιών μετατροπής αερίου σε σωματίδιο (δευτερογενή αερολύματα). Τα πρωτογενή αερολύματα προέρχονται είτε από φυσικές πηγές (π.χ. έρημοι, θάλασσες, δασικές πυρκαγιές, ηφαίστεια, κλπ.), είτε από ανθρωπογενείς δραστηριότητες (καύση ορυκτών καυσίμων από βιομηχανικές δραστηριότητες, μεταφορές, οικιακή θέρμανση, κλπ.). Έτσι, η κατηγοριοποίηση των αερολυμάτων αναφέρεται στη διαδικασία με την οποία οι στρωματώσεις αερολυμάτων συσχετίζονται με έναν τύπο αερολύματος. Ένας τρόπος κατηγοριοποίησης των αιωρούμενων σωματιδίων αποτελεί η παρακολούθηση της πορείας της αέριας μάζας στο άμεσο παρελθόν της (κάποιες ημέρες) με σκοπό την εξακρίβωση των επίγειων πηγών από τις οποίες προήλθε αρχικά και ακολούθως επηρεάστηκε κατά την πορεία της προς την περιοχη μελέτης. Η διαδικασία αυτή μπορεί να γίνει με χρήση οπισθοτροχιών των αερίων μαζών από ατμοσφαιρικά μοντέλα και με τη χρήση δορυφορικών και επίγειων φωτομετρικών δεδομένων.

Η τεχνική light detection and ranging (lidar), έχει προσελκύσει μεγάλο ενδιαφέρον τις τελευταίες δεκαετίες σε ό,τι αφορά την ανίχνευση και τον χαρακτηρισμό των αερολυμάτων. Σε ό,τι αφορά την εφαρμογή της τεχνικής lidar στην παρούσα διδακτορική διατριβή, μελετάται η οπισθοσκεδαζόμενη ακτινοβολία laser από τα ατμοσφαιρικά αερολύματα, επιτυγχάνοντας με αυτόν τον τρόπο την ενεργητική τηλεπισκόπηση της ατμόσφαιρας. Η ένταση της οπισθοσκεδαζόμενης ακτινοβολίας εξαρτάται από το μήκος κύματος της ακτινοβολίας αυτής καθώς και από το μέγεθος, το σχήμα και τη χημική σύσταση των σκεδάζοντων αερολυμάτων. Έτσι, με τη χρήση προηγμένων συστημάτων lidar, όπως η τεχνική *Raman* πολλαπλών μηκών κύματος και της αποπόλωσης, γίνεται δυνατή η ανάκτηση των εκτατικών (εξαρτώμενες από τη μάζα) και εντατικών (εξαρτώμενες από τον τύπο) οπτικών ιδιοτήτων των αερολυμάτων [συντελεστής οπισθοσκέδασης ( $\beta_{aer}$ ), συντελεστής εξασθένησης ( $a_{aer}$ ), λόγος lidar (LR), εκθέτης Ångström (AE) και συντελεστής αποπόλωσης ( $\delta_{aer}$ )] με υψηλή χωρική (μερικά μέτρα) και χρονική (από δευτερόλεπτα έως λεπτά) ακρίβεια, σε σχεδόν πραγματικό χρόνο. Έχοντας ως αναφορά τις οπτικές ιδιότητες των αερολυμάτων που προκύπτουν από τη χρήση της τεχνικής lidar, έχουν αναπτυχθεί δύο αυτοματοποιημένες μέθοδοι για την ταξινόμηση των στρωματώσεων αερολυμάτων που μετρώνται από συστήματα Raman lidar πολλαπλών μηκών κύματος και αποπόλωσης: (1) ο αλγόριθμος *Mahalanobis* (MD) και (2) ένα νευρωνικό δίκτυο (*NATALI*). Αμφότερες τεχνικές, χρησιμοποιούν τις εντατικές οπτικές ιδιότητες αερολυμάτων, που ανακτώνται με την τεχνική lidar, για να ταξινομήσουν τις παρατηρούμενες στρωματώσεων αερολυμάτων. Ωστόσο, διαφορετικά είδη αερολυμάτων μπορεί να σχετίζονται με παρόμοιες τιμές των εντατικών οπτικών ιδιοτήτων τους (π.χ. ανθρωπογενή, καύσης βιομάζας, ηπειρωτικά καθαρά αερολύματα κλπ.), οι μέθοδοι κατηγοριοποίησης αερολυμάτων που βασίζονται σε αυτές υπόκεινται σε ορισμένους περιορισμούς. Οι περιορισμοί αυτοί οδήγησαν στην ανάγκη δημιουργίας ενός βελτιωμένου αλγορίθμου αυτοματοποιημένης κατηγοριοποίησης των στρωματώσεων αιωρούμενων σωματίδιων. Ο αλγόριθμος, που αναπτύχθηκε ονομάζεται *SCAN* και βασίζεται στο χρόνο που περνά η αέρια μάζα πάνω από μια ήδη χαρακτηρισμένη περιοχή πηγής αερολυμάτων και σε ορισμένα πρόσθετα κριτήρια. Όντας ανεξάρτητος από τις οπτικές ιδιότητες των αερολυμάτων, αυτός ο αλγόριθμος παρέχει το πλεονέκτημα ότι η διαδικασία ταξινόμησης των σωρούμενων σωματίδιων.

Στο Πρώτο Μέρος της παρούσας Διδακτορικής Εργασίας, συγκρίνονται τρεις ανεξάρτητες μέθοδοι ταξινόμησης αερολυμάτων, NATALI, MD και SCAN, παρουσιάζοντας τα δυνατά σημεία και τους περιορισμούς τους. Επιπλέον, μελετώνται οι οπτικές [συντελεστής οπισθοσκέδασης (β<sub>aer</sub>), συντελεστής εξασθένησης (α<sub>aer</sub>), λόγος lidar (LR), εκθέτης Ångström (AE) και συντελεστής αποπόλωσης (δ<sub>aer</sub>)] και μικροφυσικές ιδιότητες [ενεργός ακτίνα (r<sub>eff</sub>), συντελεστής μεμονωμένης σκέδασης (SSA), συγκέντρωση όγκου (V<sub>c</sub>), δείκτης διάθλασης (n+ik)] μειγμάτων αερολυμάτων ελεύθερης τροπόσφαιρας όπως ανακτήθηκαν από μετρήσεις σε διάφορους Ευρωπαϊκούς σταθμούς lidar, συμπεριλαμβανομένης της ανατολικής Μεσογείου. Έτσι, δημιουργήθηκε μια ολοκληρωμένη βάση δεδομένων οπτικών ιδιοτήτων των πιο αντιπροσωπευτικών μειγμάτων αερολυμάτων που παρατηρούνται στην περιοχή της Ευρώπης και στην ευρύτερη περιοχή της ανατολικής Μεσογείου. Ιδιαίτερη έμφαση δόθηκε στη μελέτη στρωματώσεων αερολυμάτων που περιέχουν σωματίδια καύσης βιομάζας και μείξεις αυτών με άλλα είδη αερολυμάτων, όπως είναι τα ηπειρωτικά ρυπασμένα ή τα ερημικά σωματίδια.

Αντλώντας πληροφορίες από τη βάση δεδομένων που δημιουργήσαμε για κάθε τύπο αερολυμάτων, υπολογίσθηκε για πρώτη φορά η επίδραση των επικρατέστερων μειγμάτων αερολυμάτων της ελευθερης τροπόσφαιρας στο ατμοσφαιρικό ενεργειακό ισοζύγιο στην περιοχή της ανατολικής Μεσογείου. Ταυτόχρονα, προτάθηκε ένας νέος τρόπος διαχωρισμού των αερολυμάτων που προέρχονται από καύση βιομάζας και ρυπασμένων ηπειρωτικών αερολυμάτων.

Εκτός από τη διαταραχή που προκαλούν τα ατμοσφαιρικά αερολύματα στο ατμοσφαιρικό ισοζύγιο ακτινοβολίας, τα εισπνεόμενα αερολύματα θεωρούνται υπεύθυνα και για πολλά προβλήματα υγείας, που αφορούν βραχυπρόθεσμες αναπνευστικές ασθένειες έως και την πρόωρη θνησιμότητα. Ωστόσο, η σοβαρότητα των κινδύνων αυτών εξαρτάται από τις συγκεντρώσεις των εισπνεόμενων  $PM_{10}$  ή  $PM_{2.5}$  (αερολύματα με αεροδυναμική διάμετρο <10 μm ή <2,5 μm, αντίστοιχα) και από την περιοχή στην οποία αυτά εναποτίθενται εντός της αναπνευστικής οδού. Αυτή η περιοχή διαφέρει από άνθρωπο σε άνθρωπο λόγω των διαφορών στη γεωμετρία του αναπνευστικού συστήματος, στον τρόπο αναπνοής του κάθε ατόμου, καθώς και στο μέγεθος και το σχήμα των αερολυμάτων.

Επιπλέον, πρόσφατες μελέτες υποδεικνύουν ότι τα PM με διαφορετική χημική σύνθεση συμπεριφέρονται διαφορετικά στο ανθρώπινο σώμα μετά την εισπνοή, ανάλογα με τη διαλυτότητα και την τοξικότητά τους. Πιο συγκεκριμένα, η εισπνοή PM που περιέχουν μέταλλα (όπως Fe, Cr, Cu, Co, Zn, Ni) ή οργανικές ενώσεις (συμπεριλαμβανομένων των κινονών, πολυκυκλικών αρωματικών υδρογονανθράκων (PAH)) μπορεί να

προκαλέσει το σχηματισμό ελεύθερων ριζών οξυγόνου (Reactive Oxygen Species-ROS) *in-vivo*, ο οποίος οδηγεί στο λεγομενο οξειδωτικό στρες, σε φλεγμονές ή ακόμα και σε κυτταρικό θάνατο, προκαλώντας τελικά διάφορες ασθένειες. Με άλλα λόγια, οι βλάβες που προκαλούν τα PM στην ανθρώπινη υγεία δεν προσδιορίζονται εύκολα, λόγω της μεταβλητότητας της χημικής σύνθεσης των εισπνεόμενων PM και της χρονικής διάρκειας της έκθεσης του ανθρώπου σε αυτά.

Ωστόσο, δεν υπάρχουν ακόμα επαρκείς πληροφορίες για να εξαχθούν σαφή συμπεράσματα σχετικά με τις επιπτώσεις στην ανθρώπινη υγεία διαφορετικών ειδών αερολυμάτων (θειικά άλατα, νιτρικά άλατα, οργανικός και μαύρος άνθρακας) και, ιδιαίτερα, του καπνού από την καύση βιομάζας, συμπεριλαμβανομένης της ικανότητάς τους να προκαλούν οξειδωτικό στρες στα ανθρωπινα κύτταρα. Ως εκ τούτου, απαιτείται η ανάγκη να πραγματοποιηθεί μια σύγκριση των διαθέσιμων υπολογιστικών μοντέλων εναπόθεσης αερολυμάτων στο ανθρώπινο αναπνευστικό σύστημα με χρήση πραγματικών δεδομένων συγκεντρώσεων και χημικής σύστασης αερολυμάτων, καθώς και ο υπολογισμός του οξειδωτικού δυναμικού τους.

Έτσι, το τελευταίο μέρος της παρούσας Διδακτορικής Εργασίας στοχεύει: στην εκτίμηση της οξειδωτικής ικανότητας διαφορετικών τύπων αερολυμάτων και στην παροχή ποσοτικών εκτιμήσεων των επιπτώσεων που ενδέχεται να προκαλούν διαφορετικής προέλευσης αερολύματα στο ανθρώπινο αναπνευστικό σύστημα. Ταυτόχρονα, παρέχεται και η σύγκριση των τριών διαφορετικών μοντέλων δοσιμετρίας αερολυμάτων στο ανθρώπινο αναπνευστικό σύστημα.

# 5.2. Μεθοδολογια

Στο Κεφάλαιο αυτό περιγράφουμε τη μεθοδολογία που ακολουθήσαμε στις 5 μελέτες από τις οποίες απαρτίζεται η παρούσα Διδακτορική Διατριβή.

#### 5.2.1. Sygkpieh twn 3 meoolwn kathfopiopioihene aepolymatwn

Στο πλαίσιο της πρώτης μελέτης, πραγματοποιήθηκε, αρχικά, η διαλογή κι η συλλογή οπτικών ιδιοτήτων αιωρούμενων σωματιδίων από τη βάση δεδομένων του Ευρωπαϊκού δικτύου ενεργητικής τηλεπισκόπησης, (European Aerosol Research Lidar Network) *EARLINET* (www.earlinet.org). Πιο συγκεκριμένα, συλλέχθηκαν οπτικές ιδιότητες που αφορούν στρωματώσεις αερολυμάτων που καταγράφηκαν σε τέσσερεις διαφορετικούς σταθμούς lidar πολλαπλών μηκών κύματος και αποπόλωσης του δικτύου EARLINET υπό ανέφελες ατμοσφαιρικές συνθήκες κατά το χρονικό διάστημα των ετών 2015-2018. Η σύγκριση των τριών μεθόδων κατηγοριοποίησης αερολυμάτων, αλλά και η μετέπειτα στατιστική ανάλυση των αποτελεσμάτων κατηγοριοποίησης βασίσθηκε στα δεδομένα των κατακόρυφων κατανομών των οπτικών ιδιοτήτων των αερολυμάτων, β<sub>aer</sub>, a<sub>aer</sub>, LR, AE, στα 355 και 532 nm καθώς και στο συντελεστή δ<sub>aer,532</sub>, κυρίως μεταξύ των υψών 1000 και 6000 m από τη μέση επιφάνεια της θάλασσας.

Όπως προαναφέρθηκε, χρησιμοποιήθηκαν τρεις τεχνικές κατηγοριοποίησης αερολυμάτων: από αυτές, η μέθοδος NATALI (Nicolae, et al., 2018a,b) αποτελεί ένα νευρωνικό δίκτυο το οποίο αναγνωρίζει τους βασικούς τύπους αερολυμάτων καθώς και τις μείξεις τους σε μια στρωμάτωση αερολυμάτων. Η ταυτοποίηση του είδους του αερολύματος της μελετούμενης στρωμάτωσης, βασίζεται στις ανάλυση των κατακόρυφων κατανομών των οπτικών ιδιοτήτων των αερολυμάτων όπως παρέχονται από τη βάση δεδομένων του δικτύου EARLINET. Αντίστοιχα, ο αλγόριθμος κατηγοριοποίησης MD (Papagiannopoulos, et al., 2018) αποτελεί μια εφαρμογή της τεχνικής κατηγοριοποίησης Mahalanobis distance και βασίζεται στη σύγκριση των των οπτικών ιδιοτήτων βασικών τυπων αερολυμάτων και των αντίστοιγων των προς κατηγοριοποίηση στρωματώσεων αερολυμάτων. Τέλος, ο αλγόριθμος SCAN (Mylonaki, et al., 2021a) αποτελεί μια αυτοματοποίηση της κλασσικής μεθόδου κατηγοριοποίησης αερολυμάτων, η οποία βασίζεται στη μελέτη της πορείας της αέριας μάζας για κάποιες ημέρες πριν την παρατήρησή της από το σύστημα lidar. Αναλυτικά, υπολογίζονται οι ώρες, κατά τις οποίες η παρατηρούμενη αέρια μάζα παρέμεινε σε ορισμένες γεωγραφικές περιοχές που αποτελούν συγκεκριμένες πηγές αερολυμάτων. Ταυτόχρονα, εφαρμόζονται ορισμένα κριτήρια που αφορούν, κυρίως, στην απόσταση της αέριας μάζας από το έδαφος, σε περιοχές εύρους μερικών χιλιομέτρων, ώστε τελικά να θεωρηθεί ότι η αέρια μάζα επηρεάστηκε από την εκάστοτε πηγή αερολυμάτων. Στις περιπτώσεις κατά τις οποίες (με γρήση δορυφορικών δεδομένων), προκύπτει ότι η αέρια μάζα επηρεάσθηκε για παράδειγμα από πηγές καύση βιομάζας, λαμβάνεται υπόψη και μια επιπλέον παράμετρος ώστε να διασφαλισθεί η εγκυρότητα της πηγή αυτής.

# 5.2.2. Κατηγοριοποίηση αιωρούμενων σωματιδίων στην πολή του Βολού

Η δεύτερη μελέτη πραγματοποιήθηκε στο πλαίσιο του ερευνητικού προγράμματος ΠΑΝελλΑδιΚή υποδομή για τη μΕλέτη της ατμοσφαιρικής σύστασης και κλΙματικής Αλλαγής (ΠΑΝΑΚΕΙΑ; https://panacea-ri.gr/) που αποτελεί την μοναδική ολοκληρωμένη ερευνητική υποδομή για τη σύσταση της ατμόσφαιρας και την κλιματική αλλαγή, όχι μόνο για την Ελλάδα, αλλά για όλη τη Νότια Ευρώπη και την Ανατολική Μεσόγειο. Στο πλαίσιο του προγράμματους αυτού, πραγματοποιήθηκε τον Ιούλιο του 2019 η πρώτη συντονισμένη πειραματική εκστρατεία που είχε ως σκοπό τον εντοπισμό των κύριων πηγών των αερολυμάτων, την εξαγωγή των φυσικοχημικών ιδιοτήτων τους και την εκτίμηση των σχετικών επιπτώσεών τους στην υγεία με ταυτόχρονες μετρήσεις αερολυμάτων σε διάφορες αστικές περιοχες και περιφερειακές πόλεις της Ελλάδας. Κατά το χρονικό

διάστημα της πειραματικής εκστρατείας αυτής (Ιούλιος 2019), το κινητό σύστημα lidar αποπόλωσης AIAS του Εθνικού Μετσόβιου Πολυτεχνείου (ΕΜΠ) λάμβανε συνεχείς μετρήσεις στην πόλη του Βόλου, σε κοντινή απόσταση από το κέντρο και το λιμάνι αυτού.

Η κατηγοριοποίηση των στρωματώσεων των αερολυμάτων που παρατηρήθηκαν πραγματοποιήθηκε με την χρήση του αλγόριθμου SCAN, ενώ η επεξεργασία των δεδομένων lidar με το αυτοματοποιημένο εργαλείο επεξεργασίας δεδομένων lidar *Single Calculus Chain* (SCC, D'Amico et al., 2016; Mattis et al., 2016) που έχει υλοποιηθεί στο πλαίσιο του δικτύου EARLINET για την αυτοποιημένη επεξεργασία των δεδομένων lidar. Η μελέτη βασίσθηκε στις κατακόρυφες κατανομές των οπτικών ιδιοτήτων των αερολυμάτων (β<sub>aer,532</sub> και δ<sub>aer,532</sub>), κυρίως μεταξύ των υψών 1000 και 6000 m από τη μέση επιφάνεια της θάλασσας.

### 5.2.3. Κατηγοριοποιήση αιωρούμενων σωματιδίων στην πολή της Αθηνάς

Στη συνέχεια, κατηγοριοποιήθηκαν όλες οι στρωματώσεις αιωρούμενων σωματιδίων που παρατηρήθηκαν στην Αθήνα υπό ανέφελες συνθήκες και συγκεκριμένα στην περιοχή του ΕΜΠ από το σταθερό σύστημα Mie-Raman lidar *EOLE* (Papayannis, et al., 2020) του Εργαστηρίου *Οπτοηλεκτρονικής, Laser και Εφαρμογών τους* κατά το χρονικό διάστημα των ετών 2011-2019 με χρήση της μεθόδου κατηροριοποίησης αερολυμάτων SCAN.

Ιδιαίτερη έμφαση δόθηκε στη στατιστική μελέτη των οπτικών και μικροφυσικών ιδιοτήτων των στρωματώσεων αερολυμάτων καύσης βιομάζας και μείξεων αυτών με άλλα είδη αερολυμάτων, όπως τα ηπειρωτικά ρυπασμένα και ερημικά σωματίδια. Όπως και προηγουμένως, η επεξεργασία των δεδομένων ενεργητικής τηλεπισκόπησης πραγματοποιήθηκε με το αυτοματοποιημένο εργαλείο επεξεργασίας δεδομένων lidar SCC, ενώ για τον υπολογισμό των μικροφυσικών ιδιοτήτων αερολυμάτων χρησιμοποιήθηκε η μεθοδολογία, όπως περιγράφεται από τους Veselovskii et al. (2002 και 2015). Στη συνέχεια, πραγματοποιήθηκε η στατιστική μελέτη των οπτικών ιδιοτήτων και των υπόλοιπων ειδών αιωρούμενων σωματιδίων που παρατηρήθηκαν στο σταθμό lidar του ΕΜΠ, με σκοπό τη δημιουργία μιας ολοκληρωμένης βάσης δεδομένων η οποία συσχετίζει τα επικρατέστερα είδη αιωρούμενων σωματιδίων στην περιοχή της Ανατολικής Μεσογείου με τις οπτικές τους ιδιότητες. Και οι δύο στατιστικές αναλύσεις βασίσθηκαν στα δεδομένα των κατακόρυφων κατανομών των οπτικών ιδιοτήτων των αερολυμάτων χατακόρυφων κατανομών των οπτικών των αερολυμάτων στη περιοχή της Ανατολικής Μεσογείου με τις οπτικές τους ιδιότητες. Και οι δύο στατιστικές αναλύσεις βασίσθηκαν στα δεδομένα των κατακόρυφων κατανομών των οπτικών ιδιοτήτων των αερολυμάτων β<sub>aer</sub>, α<sub>aer</sub>, LR και AE, στα 355 και 532 nm., κυρίως μεταξύ των υψών 1000 και 6000 m από τη μέση επιφάνεια της θάλασσας.

# 5.2.4. Μελετή της επιδράσης των αιωρούμενων σωματιδιών στο ενεργειακό ισοζύγιο ακτινοβολίας της ατμοσφαίρας

Η τέταρτη μελέτη βασίσθηκε στις ημερήσιες μετρήσεις που ελήφθησαν από το σύστημα lidar EOLE υπό ανέφελες καιρικές συνθήκες κατά τη χρονική περίοδο 2014-2019 και στο μοντέλο υπολογισμού διάδοσης ακτινοβολίας Libradtran (Emde, et al., 2016; Mayer & Kylling, 2005; http://www.Libradtran.org).

Συγκεκριμένα, οι στρωματώσεις αιωρούμενων σωματιδίων που παρατηρήθηκαν στην Αθήνα κατά το προαναφερθέν χρονικό διάστημα, κατηγοριοποιήθηκαν χρησιμοποιώντας τον αλγόριθμο SCAN. Στη συνέχεια, χρησιμοποιήθηκε το αυτοματοποιημένο εργαλείο SCC για την επεξεργασία των μετρήσεων lidar και την εξαγωγή των κατακόρυφων κατανομών των παραμέτρων β<sub>aer,355</sub>, β<sub>aer,532</sub> και β<sub>aer,1064</sub> για κάθε στρωμάτωση αερολυμάτων. Η μελέτη αυτή βασίσθηκε σε στρωματώσεις που παρατηρήθηκαν κυρίως μεταξύ των υψών 1000 και 6000 m από τη μέση επιφάνεια της θάλασσας. Ταυτόχρονα, χρησιμοποιήθηκε η βάση δεδομένων που δημιουργήθηκε στο πλαίσιο της προηγούμενης μελέτης και συγκεκριμένα η τιμή της παραμέτρου LR<sub>532</sub> για τη μετατροπή του συντελεστή β<sub>aer,532</sub> των ημερήσιων μετρήσεων αυτής της μελέτης στο συντελεστή α<sub>aer,532</sub> ώστε

να υπολογισθεί τελικά το οπτικό πάχος των αερολυμάτων (AOD) της κάθε στρωμάτωσης. Τα δεδομένα αυτά, μαζί με την τιμή της ζενίθειας γωνίας του ηλίου (SZA) για κάθε χρονική στιγμή εμφάνισης της κάθε στρωμάτωσης και το συντελεστή λευκάγειας (albedo) του εδάφους (χρησιμοποιήθηκε η τυπική τιμή 0.15, όπως προκύπτει απο την βιβλιογραφία, Dhakal, 2002) χρησιμοποιήθηκαν από το μοντέλο ισοζυγίου ακτινοβολίας για τη μελέτη των επιπτώσεων των αιωρούμενων σωματιδίων στο ατμοσφαιρικό ισοζύγιο ακτινοβολίας της μελετούμενης γεωγραφικής περιοχής.

Επιπλέον, μελετήθηκε ένα επεισόδιο έντονης μεταφοράς αερολυμάτων που προήλθαν από τις καταστροφικές πυρκαγιές στην βόρεια Αττική και Εύβοια τον Αύγουστο του 2021. Συγκεκριμένα, χρησιμοποιήθηκε η κατακόρυφη κατανομή του συντελεστή α<sub>aer,532</sub> από το σύστημα lidar *CALIOP* που φέρει ο δορυφόρος *CALIPSO* (Winker, et al., 2009) για την ημέρα και ώρα που ο δορυφόρος πέρασε πάνω από την Ελλάδα. Ο δορυφόρος CALIPSO πέρασε περίπου 120 km βόρεια της Αθήνας στις 8 Αυγούστου 2021 και ανίχνευσε μια στρωμάτωση αερολυμάτων από τα 500 m έως περίπου τα 1500 m από το έδαφος, την οποία κατηγοριοποίησε ως στρωμάτωση αιωρούμενων σωματιδίων καύσης βιομάζας. Ακολούθως, χρησιμοποιήθηκε η κατακόρυφη κατανομή του συντελεστή α<sub>aer,532</sub>, η τιμή της ηλιακής ζενίθειας γωνίας την ώρα της παρατήρησης της στρωμάτωσης αυτής, καθώς και ο συντελεστής λευκάγειας του εδάφους στην περιοχή του Λεκανοπεδίου Αθηνών για τη μελέτη των επιπτώσεών της στο ατμοσφαιρικό ισοζύγιο ακτινοβολίας της περιοχής.

## 5.2.5. Μελετή των κινδύνων που ένεχει η είσπνοη αερολύματων καύσης βιομάζας από τις δασικές πυρκαγιές του Αυγούστου 2021 στη βορεία Αττική και Ευβοία και ερημικών αερολύματων από την έρημο Σαχαρά

Η πέμπτη και τελευταία μελέτη βασίσθηκε στις επίγειες συγκεντρώσεις αιωρούμενων σωματιδίων που μετρήθηκαν στον περιαστικό σταθμό του ΕΚΕΦΕ Δημόκριτος (σταθμός DEM) στην περιοχή της Αγίας Παρασκευής Αττικής κατά τη διάρκεια ενός έντονου επεισοδίου μεταφοράς ερημικής σκόνης από την Αφρική και των καταστροφικών πυρκαγιών στη βόρεια Αττική και Εύβοια που ακολούθησαν, μεταξύ 1 και 18 Αυγούστου 2021. Συγκρικριμένα, οι συγκεντρώσεις μάζας των PM<sub>10</sub>, και του OC στις χρονικές περιόδους κατά τις οποίες ξεπέρασαν το ετήσιο και ημερήσιο Ευρωπαϊκό όριο ποιότητας αέρα αντίστοιγα (40 μ m<sup>-3</sup> και 10 μg m<sup>3</sup> αντίστοιγα) έως και κατά 65%, συσχετίσθηκαν με συγκεκριμένους τύπους αερολυμάτων (ερημικά, καύσης βιομάζας, μείξεις των προηγούμενων). Στη συνέχεια, οι συγκεντρώσεις αυτές χρησιμοποιήθηκαν από τρία διαφορετικά μοντέλα δοσιμετρίας αερολυμάτων στο ανθρώπινο αναπνευστικό σύστημα (RT), το Multiple-Path Particle Dosimetry model (MPPD), to Particle transport and deposition model and lung clearance/retention model (RETRAC) και το Exposure Dose Model 2 (ExDoM2) με σκοπό να υπολογιστούν οι ρυθμοί εναπόθεσης αερολυμάτων, τόσο συνολικά στο αναπνευστικό σύστημα, όσο και στα επιμέρους συστήματα από τα οποία αυτό αποτελείται (ανώτερο-κατώτερο αναπνευστικό). Παράλληλα, πραγματοποιήθηκε μια μελέτη ευαισθησίας των ρυθμών δόσης εναπόθεσης αερολυμάτων υποθέτοντας διάφορες τιμές ανάπτυξης ξηρών και υγροσκοπικών αερολυμάτων. Επιπροσθέτως, πραγματοποιήθηκε μια σύγκριση των αποτελεσμάτων των τριών αυτών μοντέλων, με σκοπό την ανάδειξη των περιορισμών και των δυνατοτήτων έκαστου μοντέλου ξεχωριστά. Τέλος, υπολογίσθηκε το οξειδωτικό δυναμικό (OP) των προαναφερθέντων αερολυμάτων το οποίο αποτελεί μια ποσοτική ένδειξη της ικανότητας των αερολυμάτων να προκαλούν οξειδωτικό στρες στα ανθρώπινα κύτταρα γρησιμοποιώντας τη μέθοδο dithiothreitol assay (DTT).

### 5.3. Αποτελέσματα

Στο Κεφάλαιο αυτό παρουσιάζονται τα βασικότερα ευρύματα των 5 μελετών της παρούσας Διατριβής.

### 5.3.1. Σύγκριση των 3 μεθοδών κατηγοριοποιήσης αερολύματων

Σε ό,τι αφορά την πρώτη μελέτη, συνολικά 97 στρωματώσεις αερολυμάτων ελεύθερης τροπόσφαιρας μελετήθηκαν και ταξινομήθηκαν με τη χρήση των αλγόριθμων κατηγοριοποίησης που προαναφέραμε (MD, SCAN, NATALI). Τα αποτελέσματα διαχωρίσθηκαν σε κατηγορίες ως εξής: *1-type* (Εικόνα 1, μπλε) η οποία περιλαμβάνει τα βασικά είδη αερολυμάτων (καύση βιομάζας, ερημικά, θαλάσσια κλπ), mixtures (Εικόνα 1, γαλάζιο) η οποία περιλαμβάνει στρωματώσεις αερολυμάτων οι οποίες αποτελούνται από δύο ή και περισσότερα βασικά είδη αερολυμάτων, *ther* (Εικόνα 1, πράσινο) η οποία αποτελείται από περιπτώσεις που η μέθοδος NATALI χαρακτήρισε ως X/cloud contaminated, όπου X είναι ένας βασικός τύπος αερολυμάτων (πχ. θαλάσσια/cloud contaminated), και τέλος, *unknown* (Εικόνα 1, κίτρινο) η οποία αποτελείται από τις περιπτώσεις για τις οποίες η μέθοδος κατηγοριοποίησης δεν ήταν σε θέση να αναγνωρίσει την πηγή των μελετούμενων αερολυμάτων.



Εικόνα 1. Επίδοση κατηγοριοποίησης α) του νευρωνικού δικτύου ΝΑΤΑLΙ, β) του αλγόριθμου MD και γ) του αλγορίθμου SCAN. Οι κατηγορίες 1-type (μπλε) και mixtures (κυανό) αντιπροσωπεύουν τις στρωματώσεις αερολυμάτων που αποτελούνται από έναν και δύο ή περισσότερους τύπους αερολύματος, αντίστοιχα. Η κατηγορία other (πράσινο) αποτελείται από τις περιπτώσεις που το νευρωνικό δίκυο ΝΑΤΑLΙ χαρακτήρισε ως X/cloud contaminated όπου X ένας βασικός τύπος αερολυμάτων (πχ, θαλάσσια/cloud ccontaminated), και τέλος, η κατηγορία unknown (κίτρινο) αποτελείται από τις περιπτώσεις για τις οποίες η μέθοδος δεν ήταν σε θέση να αναγνωρίσει την πηγή των παρατηρούμενων αερολυμάτων (Mylonaki, et al., 2021a).

Από την Εικόνα 1, παρατηρούμε ότι ο αλγόριθμος NATALI κατάφερε να ταξινομήσει το μεγαλύτερο ποσοστό στρωματώσεων αερολυμάτων (96%; Εικόνα 1a), ενώ ο αλγόριθμος MD το χαμηλότερο (54%) έχοντας παράλληλα ταξινομήσει μόνο ένα 5% των στρωματώσεων αερολυμάτων ως μείξεις αυτών (Εικόνα 1b). Αυτό είναι ένα εύλογο αποτέλεσμα, δεδομένου ότι ο αλγόριθμος MD περιλαμβάνει μόνο δύο κατηγορίες μείξεων αερολυμάτων, ενώ το NATALI και το SCAN λαμβάνουν υπόψη περισσότερες κατηγορίες αερολυμάτων (14 και 6<sup>6</sup> αντίστοιχα). Επιπλέον, ο αλγόριθμος SCAN ταξινόμησε το 37% των στρωματώσεων αερολυμάτων ως *1-type*, το 30% ως mixtures και το 32% ως unknown (Εικόνα 1c). Σχετικά με την αδυναμία του αλγορίθμου SCAN να κατηγοριοποιήσει αυτό το 32% των περιπτώσεων, αυτό συμβαίνει γιατί η αέρια μάζα ταξίδεψε χωρίς να επηρεασθεί από κάποια πηγή αερολυμάτων ως αποτέλεσμα των περιορισμών ύψους πάνω από συγκεκριμένες πηγές αερολυμάτων, κριτήριο που λαμβάνει υπόψη ο αλγόριθμος SCAN κατά τη διαδικασία ταυτοποίησης των αερολυμάτων.

Για να μελετήσουμε λεπτομερώς τις διαφορές στην κατηγοριοποίηση των αερολυμάτων από τις τεχνικές που χρησιμοποιήσαμε, παρουσιάζουμε τη σύγκριση των αποτελεσμάτων κατηγοριοποίησης για τα ζεύγη MD-SCAN και SCAN-NATALI ξεχωριστά, στις Εικόνες 2 και 3, αντίστοιχα. Συγκεκριμένα, στην Εικόνα 2α παρουσιάζεται η σύγκριση μεταξύ των περιπτώσεων που ταξινομήθηκαν ως *1-type* από τον αλγόριθμο MD και ως *mixtures* από τον αλγόριθμο SCAN, ενώ η Εικόνα 3b παρουσιάζει τον αριθμό των *unknown* περιπτώσεων του MD που κατηγοριοποιήθηκαν ως *1-type* από τον αλγόριθμο SCAN. Τέλος, η Εικόνα 3c παρουσιάζει τον αριθμό των 99 unknown περιπτώσεων του MD που κατηγοριοποιήθηκαν ως mixtures ή other από το SCAN. Τα διαγράμματα πίτας πάνω από κάθε ράβδο (Εικόνα 3b) και κάθε στέλεχος (Εικόνα 3c) παρουσιάζουν τη συχνότητα εμφάνισης κάθε τύπου αερολύματος όπως υπολογίσθηκε από τον αλγόριθμο MD.

Έτσι, οι περιπτώσεις που κατηγοριοποιήθηκαν από το SCAN ως continental polluted and smoke, κατηγοριοποιήθηκαν είτε ως continental polluted, είτε ως clean continental από τον αλγόριθμο MD (Εικόνα 3a). Ταυτόχρονα, από τις unknown περιπτώσεις της μεθόδου MD, 8 ταξινομήθηκαν ως continental polluted (Εικόνα 3b) και άλλες 6 ως continental polluted and smoke από τον αλγόριθμο SCAN (Εικόνα 3c). Οι δυσκολίες του αλγόριθμου MD να κατηγοριοποιήσει αποτελεσματικά τις στρωματώσεις των αερολυμάτων αυτών των κατηγοριών αποδίδονται στη διαδικασία ταξινόμησής του, η οποία βασίζεται στις συχνά παρόμοιες τιμές των οπτικών ιδιοτήτων των αερολυμάτων αυτών των κατηγοριών.



Εικόνα 2. α) Σύγκριση ένα-προς-ένα μεταξύ των στρωματώσεων που ταξινομήθηκαν από τον MD ως 1-type και ως mixture από τον αλγόριθμο SCAN. Ο αριθμός των στρωματώσεων όπως υποδεικνύεται από τη σειρά "i" και τη στήλη "j" δίνεται μέσα σε κάθε τετράγωνο "(i,j)". β) Αριθμός στρωματώσεων αερολυμάτων που ταξινομήθηκαν από τον αλγόριθμο MD ως unknown και ως 1-type από τον αλγόριθμο SCAN. · γ) Αριθμός στρωματώσεων αερολυμάτων που ταξινομήθηκαν από τον αλγόριθμο MD ως unknown και ως 1-type από τον αλγόριθμο SCAN. · γ) Αριθμός στρωματώσεων αερολυμάτων που ταξινομήθηκαν από τον αλγόριθμο MD ως unknown και ως 1-type από τον αλγόριθμο SCAN. · γ) Αριθμός στρωματώσεων αερολυμάτων που ταξινομήθηκαν από τον αλγόριθμο MD ως unknown και ως mixture από τον αλγόριθμο SCAN. · γ) Αριθμός στρωματώσεων αερολυμάτων που ταξινομήθηκαν από τον αλγόριθμο MD ως unknown και ως mixture από τον αλγόριθμο SCAN. · γ) Αριθμός από κάθε ράβδο και κάθε στέλεχος παρουσιάζουν τη συχνότητα εμφάνισης κάθε τύπου αερολύματος όπως υπολογίσθηκαν από τον αλγόριθμο MD. cc: ηπειρωτικό, cp: ηπειρωτικό ρυπασμένο, s: καύση βιομάζας, m: θαλάσσια, d: ερημικά, /cc: cloud contaminated (Mylonaki, et al., 2021a).

Αντίστοιχα, στην Εικόνα 3 παρουσιάζουμε τη σύγκριση των αποτελεσμάτων κατηγοριοποίησης μεταξύ του αλγορίθμου SCAN και NATALI. Ωστόσο, αυτήν τη φορά, η Εικόνα 3 παρουσιάζει τη σύγκριση μεταξύ των περιπτώσεων που (a) το SCAN κατηγοριοποίησε ως *mixtures* και το NATALI ως 1-type, (b) το SCAN κατηγοριοποίησε ως 1 τύπος και το NATALI ως other, και (c) το SCAN ταξινομήθηκε ως *mixtures* και το NATALI ως other.



Εικόνα 3. Σύγκριση ένα-προς-ένα μεταξύ των στρωματώσεων που ταξινομήθηκαν από α) το νευρωνικό δίκτυο ΝΑΤΑLΙ ως 1-type και τον αλγόριθμο SCAN ως mixture, β) το νευρωνικό δίκτυο ΝΑΤΑLΙ ως other και τον αλγόριθμο SCAN ως 1-type και γ) το νευρωνικό δίκτυο ΝΑΤΑLΙ ως other και τον αλγόριθμο SCAN ως 1-type και γ) το νευρωνικό δίκτυο ΝΑΤΑLΙ ως other και τον αλγόριθμο SCAN ως 1-type και γ) το νευρωνικό δίκτυο ΝΑΤΑLΙ ως other και τον αλγόριθμο SCAN ως πixture. Ο αριθμός των στρωματώσεων όπως υποδεικνύεται από τη σειρά "i" και τη στήλη "j" δίνεται μέσα σε κάθε τετράγωνο "(i,j)". cc: ηπειρωτικό, cp: ηπειρωτικό ρυπασμένο, s: καύση βιομάζας, m: θαλάσσια, d: ερημικά, /cc: cloud contaminated (Mylonaki, et al., 2021a).

Από την Εικόνα 3 μπορεί να συναχθεί το συμπέρασμα ότι οι οπτικές ιδιότητες του μείγματος αερολυμάτων τύπου continental polluted and smoke (cp+s) με βάση την ταξινόμηση του SCAN αποδίδονται, είτε στην κατηγορία continental clean (cc), είτε στην κατηγορία continental polluted (cp) με βάση την κατηγοριοποίηση του αλγορίθμου NATALI, γεγονός που αποδίδεται στην εξάρτηση της μεθόδου αυτής από τις εντατικές οπτικές ιδιότητες των αερολυμάτων που συχνά είναι παρόμοιες (για παράδειγμα για τις κατηγορίες αερολυμάτων continental polluted, smoke and continental clean).

Εκτός από τις προαναφερθέντες εσφαλμένες κατηγοριοποιήσεις από τους αλγορίθμους κατηγοριοποίησης στρωματώσεων αερολυμάτων, υπάρχουν μερικοί ακόμα περιορισμοί των μεθόδων αυτών που πρέπει να αναφερθούν. Έτσι, σαν παράδειγμα παρουσιάζουμε την κατηγοριοποίηση τριών στρωματώσεων αερολυμάτων που παρατηρήθηκαν στην περιοχή της Potenza (Ιταλία) στις 30 Ιουλίου 2015 (21:26 UTC).

Η Εικόνα 4 απεικονίζει τις κατακόρυφες κατανομές του: α) συντελεστή οπισθοσκέδασης αερολυμάτων στα 355, 532, 1064 nm, β) του συντελεστή εξασθένησης αερολυμάτων στα 355 και 532 nm, γ) του λόγου lidar στα 355 και 532 nm, δ) του εκθέτη Ångstöm, καθώς και ε) του συντελεστή αποπόλωσης αερολυμάτων που παρατηρήθηκαν στην Potenza (Ιταλία) στις 30 Ιουλίου 2015 (21:26 UTC). Η βάση (κόκκινη οριζόντια γραμμή) και η κορυφή (μαύρη οριζόντια γραμμή) των στρωματώσεων αυτών παρατηρήθηκε στα (1) 2.8 και 3.1 km (κατώτερη στρωμάτωση), (2) 3.4 και 3.9 km (μεσαία στρωμάτωση) και (3) 4.5 και 5.4 km (υψηλότερη στρωμάτωση), αντίστοιχα.



Εικόνα 4. Κατακόρυφη κατανομή του (α) συντελεστή οπισθοσκέδασης αερολυμάτων στα 355, 532 και 1064 nm, (β) συντελεστής εξασθένησης αερολυμάτων στα 355 και 532 nm, (γ) λόγος lidar στα 355 και 532 nm, (δ) εκθέτης Ångström, (ε) συντελεστής αποπόλωσης αερολυμάτων στα 532 nm που παρατηρήθηκαν στην Potenza (Ιταλία) στις 30 Ιουλίου 2015 (21:26 UTC) (Mylonaki, et al., 2021a).

Πίνακας 1. Μέσες τιμές του λόγου lidar στα 355 και 532 nm, του εκθέτη Ångström και του συντελεστή αποπόλωσης αερολυμάτων στα 532 nm για τις τρεις στρωματώσεις που παρατηρήθηκαν στην Potenza (Ιταλία) στις 30 Ιουλίου 2015 (21:26 UTC) (Mylonaki, et al., 2021a).

Layer	LR <sub>355</sub> [sr]	LR <sub>532</sub> [sr]	ΑΕα355/α532	ΑΕβ355/β532	ΑΕβ532/β1064	$\delta_{aer,532}$ [%]
bottom	35.97±1.09	24.55±4.15	1.14±0.44	0.16±0.04	0.97±0.04	13.5±0.4
middle	31.05±2.11	22.50±1.69	0.86±0.25	0.06±0.13	0.79±0.06	15.4±1.5
top	38.77±4.81	24.44±3.39	0.56±0.37	-0.58±0.25	0.72±0.07	24.8±1.0

Οι μέσες εντατικές οπτικές ιδιότητες αερολυμάτων εντός των στρωματώσεων που παρατηρήθηκαν πάνω από την Potenza (Ιταλία) στις 30 Ιουλίου 2015 παρουσιάζονται στον Πίνακα 1. Ειδικότερα, οι τιμές του λόγου lidar βρέθηκαν να είναι μικρές (<39 sr στα 355 nm και <25 sr στα 532 nm), ενώ οι εκθέτες Ångström παρέμειναν κυρίως κάτω από το 1.0 και για τις τρεις παρατηρούμενες στρωματώσεις αερολυμάτων. Η διαφορά μεταξύ αυτών των τριών στρωματώσεων εντοπίζεται στην τιμή του συντελεστή αποπόλωσης, η οποία βρέθηκε να αυξάνεται σταδιακά από 13.5±0.4 % (κατώτερη στρωμάτωση) σε 15.4±1.5% (μεσαία στρωμάτωση) και τελικά έφτασε την τιμή 24.8±1.0% (υψηλότερη στρωμάτωση), υποδηλώνοντας την ύπαρξη αερολυμάτων μεγάλου μεγέθους με μερική ικανότητα να αποπολώνουν την ακτινοβολία που προσπίπτει σε αυτά στα χαμηλότερα υψόμετρα (<4.5 km) και αποπολωτικά αερολύματα υψηλότερα στην ατμόσφαιρα.

Σχετικά με την προέλευση αυτών των στρωματώσεων αερολυμάτων, η Εικόνα 5 απεικονίζει την πορεία της οπισθοτροχιάς HYSPLIT 6 ημερών (144 h), για τις αέριες μάζες που καταλήγουν στην περιοχή της Potenza (Ιταλία) (40.60°N, 15.72°E) στα (1) 3000, (2) 3800, και (3) 5000 m στις 30 Ιουλίου 2015 (21:00 UTC). Η χρωματική κλίμακα υποδεικνύει το ύψος της τροχιάς πάνω από την επιφάνεια της θάλασσας για κάθε ώρα μετακίνησης της αέριας μάζας.

Σύμφωνα με την Εικόνα 5, οι αέριες μάζες που έφτασαν στην Potenza (Ιταλία) στα 3000 m (Εικόνα 4, κατώτερη στρωμάτωση) ταξίδευσαν σε ύψος ~2000 m καθ' όλη τη διάρκεια του 6-ήμερου ταξιδιού τους. Αυτές οι αέριες μάζες ξεκίνησαν από τη βορειοδυτική Αφρική, παρέμειναν στην περιοχή σχεδόν 3 ημέρες και στη συνέχεια

πέρασαν πάνω από τη νότια Ισπανία πριν φθάσουν στην Potenza (Ιταλία) (Εικόνα 5(1)). Η στρωμάτωση που παρατηρήθηκε πάνω από την Potenza (Ιταλία) στα 3800 m asl. (Εικόνα 4, μεσαία στρωμάτωση) προήλθε από τον βόρειο Ατλαντικό Ωκεανό σε ύψος ~5000m έξι μέρες πριν και αργά κατέβηκε σε χαμηλότερα υψόμετρα πριν περάσει πάνω από τη βόρεια Ισπανία κοντά στο επίπεδο του εδάφους. Τις επόμενες δύο ημέρες, οι αέριες μάζες ταξίδεψαν σε ύψος 2000–4000 m μ. από την Ισπανία στην Ιταλία πάνω από τη Μεσόγειο Θάλασσα πριν φθάσουν στην Potenza (Ιταλία) (Εικόνα 5(2)). Τέλος, η υψηλότερη στρωμάτωση που παρατηρήθηκε πάνω από την Ροτεηza (Ιταλία) (Εικόνα 4, υψηλότερη στρωμάτωση που παρατηρήθηκε πάνω από την Ροτεηza (Ιταλία) (Εικόνα 4, υψηλότερη στρωμάτωση) είχε παρόμοια προέλευση με την προηγούμενη, εκτός από τις πρώτες τρεις ημέρες του ταξιδιού της, όταν οι αέριες μάζες ταξίδεψαν σε χαμηλά υψόμετρα (<1000 m), ενισχύοντας τη θαλάσσια συνεισφορά σε αυτήν τη στρωμάτωση (Εικόνα 5(3)).



Εικόνα 5. Οπισθοτροχιές 6 ημερών (144 h) από το μοντέλο HYSPLIT (Μετεωρολογικά δεδομένα GDAS) αέριας μάζας που παρατηρείται πάνω από την Potenza (Ιταλία) (40,60°N, 15,72°E) στα (1) 3000, (2) 4000 και (3) 5000 m. στις 30 Ιουλίου 2015 (21:00 UTC). Η χρωματική κλίμακα υποδεικνύει το ύψος της τροχιάς για κάθε ώρα μετακίνησης αυτής (Mylonaki, et al., 2021a).

Χρησιμοποιώντας αυτές τις αεροτροχιές, ο αλγόριθμος SCAN υπολόγισε ότι οι αέριες μάζες, που διαμόρφωσαν την κατώτερη στρωμάτωση που παρατηρήθηκε πάνω από την Potenza (Ιταλία), παρέμειναν περίπου 78 h επάνω από ερημικές περιοχές και για μια χρονική περίοδο 11 h εμπλουτίσθηκαν από ηπειρωτικά ρυπασμένα αερολύματα (Εικόνα 6c, κατώτερη στρωμάτωση), ταξινομώντας, τελικά, αυτή τη στρωμάτωση ως mixture continental polluted+dust. Όσον αφορά τη μεσαία στρωμάτωση, ο αλγόριθμος SCAN μέτρησε ότι οι μελετούμενες αέριες μάζες εμπλουτίσθηκαν για μια χρονική περίοδο 64 h (από τις 144 συνολικά ώρες) από ηπειρωτικά ρυπασμένα αερολύματα (Εικόνα 6c, μεσαία στρωμάτωση), ενώ αναμένεται μια σημαντική συνεισφορά αερολυμάτων ερημικής προέλευσης σύμφωνα με τις τιμές του συντελεστή αποπόλωσης (δ<sub>aer,532</sub>~15 %).

Αυτό υποδηλώνει ότι οι προκαθορισμένες περιοχές ως πιθανές πηγές αερολυμάτων στον αλγόριθμο SCAN μειώνουν τη χωρική ακρίβεια της μεθόδου αυτής, ειδικά όταν πρόκειται για τη νότια Μεσόγειο Θάλασσα, μια περιοχή που επηρεάζεται ιδιαίτερα από αέριες μάζες που προέρχονται από την έρημο Σαχάρα (Soupiona, et al., 2020; Kokkalis, et al., 2021). Σε αυτές τις περιπτώσεις, ένα μοντέλο ατμοσφαιρικής σκόνης (π.χ. BSC DREAM) θα πρέπει να χρησιμοποιείται συνεργατικά.

Τέλος, όσον αφορά την υψηλότερη στρωμάτωση που παρατηρήθηκε στην Potenza (Ιταλία), ο αλγόριθμος SCAN υπολόγισε ότι οι αέριες μάζες που τη διαμόρφωσαν εμπλουτίσθηκαν για μια χρονική περίοδο 66 h από ηπειρωτικά ρυπασμένα αερολύματα και για μια χρονική περίοδο 44 h από θαλάσσια αερολύματα (Εικόνα 6c, υψηλότερη στρωμάτωση). Το αποτέλεσμα του αλγορίθμου SCAN για αυτήν τη στρωμάτωση είναι και πάλι αβέβαιο διότι είναι εξαιρετικά απίθανο στρωματώσεις αερολυμάτων που παρατηρούνται σε τέτοια ύψη (~ 5 km) να περιέχουν θαλάσσια σωματίδια λόγω της γρήγορης εναπόθεσής τους στο έδαφος, λόγω της μεγάλης μάζας τους.



Εικόνα 6. Αποτελέσματα κατηγοριοποίησης των στρωματώσεων αερολυμάτων που παρατηρήθηκαν στην Potenza (Ιταλία) στα 3 (κάτω), 3,8 (μεσαία) και 5 km (πάνω) υψόμετρο στις 30 Ιουλίου 2015 από a) τον νευρωνικό δίκτυο ΝΑΤΑLΙ, β) τον αλγόριθμο MD και γ) τον αλγόριθμο SCAN. Τα διαφορετικά χρώματα αναφέρονται σε διαφορετικούς τύπους αερολύματος ή μείγματα αυτών. Όσον αφορά το (b), τα ποσοστά αντιπροσωπεύουν τις πιθανότητες εμφάνισης κάθε τύπου αερολύματος σύμφωνα με τον αλγόριθμο MD, ενώ όσον αφορά το (c) οι αριθμοί αντιπροσωπεύουν το χρόνο (σε ώρες) εντός του οποίου η αέρια μάζα παρέμεινε πάνω από καθορισμένους τομείς πηγών εδάφους όπως καθορίζεται στον αλγόριθμο SCAN (Mylonaki, et al., 2021a).

Από την άλλη πλευρά, η κατώτερη και η μεσαία στρωμάτωση αερολυμάτων κατηγοριοποιήθηκαν ως marine/cloud contaminated και το ανώτερο ως mineral mixtures/volcanic από τον αλγόριθμο NATALI (Εικόνα 6(a)). Ωστόσο, όσον αφορά την κατώτερη και τη μεσαία στρωμάτωση αερολυμάτων, είναι πολύ απίθανο να είναι θαλάσσιας προέλευσης, καθώς δεν περιμένουμε οι στρωματώσεις αερολυμάτων να επηρεάζονται από το θαλάσσιο υπόβαθρο σε αυτά τα ύψη (>2.5 km). Αυτά τα λανθασμένα αποτελέσματα ταξινόμησης έχουν επηρεασθεί από τις μικρές τιμές του λόγου lidar (22-35±5 sr), τυπική τιμή των θαλάσσιων αερολυμάτων (Müller, et al., 2007). Το ίδιο ισχύει και για την κατήγοριοποίηση από τον αλγόριθμο MD (Εικόνα 6(b)) που απέδωσε σε όλες τις στρωματώσεις, εκτός από την κατώτερη, μεγάλες πιθανότητες τα σωματίδια να είναι ηπειρωτικής προέλευσης.

# 5.3.2. Οπτικές ιδιότητες αιωρούμενων σωματιδίων που παρατηρήθηκαν σε 4 διαφορετικούς σταθμούς του δικτύου EARLINET (2015-2018)

Εκτός από τη σύγκριση μεταξύ των τριών μεθόδων κατηρογιοποίησης, στο πλαίσιο της δεύτερης μελέτης μελετήσαμε τις οπτικές ιδιότητες διάφορων τύπων αερολυμάτων που παρατηρήθηκαν πάνω από την Ευρώπη κατά το χρονικό διάστημα 2015-2018. Στον Πίνακα 2 παρουσιάζονται οι τιμές αυτές όπου παρατηρούμε ότι τα καθαρά ηπειρωτικά αερολύματα παρουσίασαν μεσαίες τιμές LR<sub>355</sub> (45-46±5 sr), μεσαίες έως μικρές τιμές LR<sub>532</sub> (37-39±5 sr), μεσαίες ΑΕβ355/β532 και ΑΕβ532/β1064 τιμές (1.0±0,3), υψηλές τιμές ΑΕα355/α532 (2.0±0.3), που συνοδεύονται από μικρές τιμές του συντελεστή δ<sub>aer,532</sub> (3±1%).

Παρατηρούμε ότι τα ηπειρωτικά ρυπασμένα αερολύματα, που κατηγοριοποιήθηκαν ως τέτοια από τους αλγόριθμους NATALI και το MD, παρουσίασαν μεσαίες τιμές LR355 (57±6 sr), ελαφρώς υψηλότερες τιμές

LR<sub>532</sub> (62±7 sr), μεσαίες τιμές ΑΕβ355/β532, ΑΕβ532/β1065, και ΑΕβ532/β1065, και ΑΕα355/α532 (1.1-1.4±0.3) και μικρές τιμές  $\delta_{aer,532}$  (3±1%). Ταυτόχρονα, τα ίδια αερολύματα, από τον αλγόριθμο SCAN, παρουσίασαν μεσαίες τιμές LR<sub>355</sub> και LR<sub>532</sub> (49-50±6 sr), μεσαίες τιμές ΑΕβ355/β532, ΑΕβ532/β1064 και ΑΕα355/α532 (1.0-1.5±0.3) και μικρές τιμές του συντελεστή  $\delta_{aer,532}$  (3±1%). Η ομοιότητα αυτών των τιμών με αυτές των καθαρών ηπειρωτικών είναι ο λόγος για τον οποίο παραμένει δύσκολο να γίνει σαφής διάκριση μεταξύ αυτών των δύο τύπων αερολυμάτων.

Τα αερολύματα καύσης βιομάζας, έδειξαν μεσαίες τιμές LR<sub>355</sub> (50±5 sr), μεσαίες έως μικρές τιμές LR<sub>532</sub> (37±4 sr), μεσαίες τιμές AEβ355/β532 και AEβ532/β1064 (0.9±0.3) μεσαίες προς υψηλές τιμές AEα355/α532 (1.6±0.3) και μικρές τιμές δ<sub>aer,532</sub> (3±1%). Και πάλι, η ομοιότητα αυτών των τιμών με εκείνες των καθαρών ηπειρωτικών και ηπειρωτικών ρυπασμένων αερολυμάτων είναι ο λόγος για τον οποίο παραμένει δύσκολο να γίνει σαφής διάκριση μεταξύ αυτών των τριών τόπων αερολυμάτων.

Όσον αφορά στις μείξεις αερολυμάτων ερημικής προέλευσης με θαλάσσια, έδειξαν μεσαίες έως μικρές τιμές LR<sub>355</sub> και LR<sub>532</sub> (43-46±5 sr), μικρές AEβ355/β532, AEβ532/β1064 και AEα355/α532 values (-0.2-0.7±0.2), και μεσαίες τιμές  $\delta_{aer,532}$  (15±5%). Αυτές οι τιμές υποδεικνύουν την ύπαρξη μεγάλων και αποπολωτικών σωματιδίων, επιβεβαιώνοντας ότι ο τύπος αυτών των σωματιδίων είναι μείξη ερημικής σκόνης με θαλάσσια αερολύματα (Burton, et al., 2012; Papagiannopoulos, et al., 2016).

Ta θαλάσσια αερολύματα εμφάνισαν μικρές τιμές LR<sub>355</sub> (35±4 sr), ακόμη μικρότερες τιμές του LR<sub>532</sub> (27±3 sr), μικρές έως μεσαίες τιμές AEβ355/β532 και AEβ532/β1064 (0.9-1.0±0.2), αυξημένες τιμές AEα355/α532 (1.7±0.3) και μικρές τιμές  $\delta_{aer,532}$  (4±2%). Αυτές οι τιμές είναι σύμφωνες με αυτές που αναφέρονται από τους Cattrall et al. (2005), Burton et al. (2012, 2013) και Dawson et al. (2015) σχετικά με τα θαλάσσια αερολύματα.

	Meth od	Clean Cont.	Cont. Pollu ted	Smok e	Marine /Cl. Cont.	Dust+Ma rine	Cont. Polluted+S moke	Cont. Polluted+M arine	Cont. Polluted+Dust+M arine/Cl. Cont.
No of cases	NAT	24	24	-	11	-	-	14	7
	MD	29	13	-	-	4	-	-	-
	SCA N	-	22	5	-	-	16	4	-
LR355 [sr]	NAT	46.3± 5.0	57.5± 6.0	-	34.6±3. 5	-	-	69.0±11.0	41.4±4.3
	MD	44.9± 5.1	57.0± 6.4	-	-	42.5±4.4	-	-	-
	SCA N	-	50.2± 5.5	45.8± 4.7	-	-	$52.4\pm7.9$	45.3±5.9	-
LR <sub>532</sub> [sr]	NAT	37.3± 3.7	61.6± 6.7	-	27.3±3. 4	-	-	31.0±5.3	43.1±4.6
	MD	38.9± 4.6	61.0± 6.9	-	-	46.0±4.7	-	-	-

**Πίνακας 2.** Μέσες τιμές και οι τυπικές αποκλίσεις του λόγου lidar στα 355 και 532 nm, του εκθέτη Ångström και του συντελεστή αποπόλωσης αερολυμάτων στα 532 nm για τις τρεις στρωματώσεις που παρατηρήθηκαν στους τέσσερεις Ευρωπαϊκούς σταθμούς lidar μέλη του δικτύου EARLINET σύμφωνα με α) το νευρωνικό δίκτυο NATALI, β) τον αλγόριθμο MD και γ) τον αλγόριθμο SCAN (Mylonaki, et al., 2021a).

	Meth od	Clean Cont.	Cont. Pollu ted	Smok e	Marine /Cl. Cont.	Dust+Ma rine	Cont. Polluted+S moke	Cont. Polluted+M arine	Cont. Polluted+Dust+M arine/Cl. Cont.
	SCA N	-	49.2± 5.4	37.2± 4.0	-	-	47.3 ± 7.1	54.8±7.2	-
AEα355/α 532	NAT	2.0±0 .3	1.2±0 .3	-	1.7±0.3	-	-	0.9±0.4	-0.1±0.3
	MD	1.6±0 .3	1.1±0 .3	-	-	-0.2±0.2	-	-	-
	SCA N	-	1.5±0 .3	1.6±0 .3	-	-	$1.5 \pm 0.4$	0.3±0.3	-
ΑΕβ355/β 532	NAT	1.1±0 .3	1.4±0 .3	-	0.9±0.3	-	-	-1.2±0.4	0.0±0.3
	MD	1.1±0 .3	1.2±0 .3	-	-	0.0±0.2	-	-	-
	SCA N	-	1.2±0 .3	0.9±0 .3	-	-	$0.8 \pm 0.4$	0.5±0.3	-
ΑΕβ532/β 1064	NAT	1.2±0 .2	1.1±0 .2	-	1.0±0.2	-	-	1.3±0.2	0.7±0.1
	MD	1.1±0 .2	1.1±0 .2	-	-	0.7±0.1	-	-	-
	SCA N	-	1.0±0 .2	1.3±0 .2	-	-	$1.3\pm0.2$	0.7±0.2	-
δ <sub>aer,532</sub> [%]	NAT	3.4±1 .4	2.3±0 .7	-	4.1±1.6	-	-	2.7±1.6	13.0±4.4
	MD	3.0±1 .2	2.7±1 .0	-	-	15.2±5.3	-	-	-
	SCA N	-	3.3±1 .3	2.7±1 .1	-	-	$4.0 \pm 1.9$	7.7±3.8	-

Οι μείξεις ηπειρωτικών ρυπασμένων με θαλάσσια αερολύματα παρουσίασαν μεσαίες τιμές LR<sub>355</sub> (45±6 sr), αυξημένες τιμές LR<sub>532</sub> (55±7 sr), μικρές τιμές AEβ355/β532, AEβ532/β1064 και AEα355/α532 (0.3–0.7±0.3) και μικρές τιμές  $\delta_{aer,532}$  (8±4%). Οι μικρές τιμές της παραμέτρου  $\delta_{aer,532}$  είναι ενδεικτικές μη αποπολωτικών αερολυμάτων όπως είναι τα ηπειρωτικά ρυπασμένα (Burton, et al., 2013; Giannakaki, et al., 2010; Groß, et al., 2013; Müller, et al., 2007) και τα θαλάσσια αερολύματα (Gross, et al., 2011; Burton, et al., 2012, 2013; Gross, et al., 2013), ενώ οι μικρές τιμές των AEβ355/β532, AEβ532/β1064 και AEα355/α532 είναι ενδεικτικές θαλάσσιων αερολυμάτων. Ωστόσο, οι αυξημένες τιμές LR<sub>532</sub> είναι περισσότερο ενδεικτικές των ηπειρωτικών ρυπασμένων, παρά των θαλάσσιων αερολυμάτων.

Τα ηπειρωτικά ρυπασμένα με καπνό αερολύματα παρουσίασαν μεσαίες τιμές LR<sub>355</sub> και LR<sub>532</sub> (47-52±8 sr), μεσαίες τιμές AE $\beta$ 355/ $\beta$ 532 και AE $\beta$ 532/ $\beta$ 1064 (0.8-1.3±0.4), υψηλές τιμές AE $\alpha$ 355/ $\alpha$ 532 (1.5±0.4) και μικρές τιμές δ532 (4±2%). Οι μεσαίες τιμές LR<sub>355</sub> και LR<sub>532</sub> υποδεικνύουν ηπειρωτικά ρυπασμένα αερολύματα (Burton, et al., 2013; Giannakaki, et al., 2010; Groß, et al., 2013; Müller, et al., 2007; Papanikolaou, 2000, ), ενώ οι

υψηλές τιμές ΑΕα355/α532 υποδεικνύουν την ύπαρξη αερολυμάτων καπνού (Müller, et al., 2005; Wandinger, et al., 2002).

Τέλος, οι μείξεις ηπειρωτικών ρυπασμένων αερολυμάτων με σωματίδια καύσης βιομάζας, θαλάσσια και ερημικά αερολύματα παρουσίασαν μεσαίες τιμές LR<sub>355</sub> και LR<sub>532</sub> (41-43±5 sr), μικρές τιμές AEβ355/β532, AEβ532/β1064 και AEα355/α532 (-0.1-0.7±0.3) και μεσαίες τιμές δ532 (13±4%). Εδώ, οι μεσαίες τιμές του δ532 είναι ενδεικτικές για μείγματα σκόνης (Burton, et al., 2015; Groß, et al., 2011, 2015), ενώ οι μικρές τιμές AEβ355/β532, AEβ355/β532, AEβ532/β1064 και AEα355/α532 είναι ενδεικτικές των μεγάλων αερολυμάτων, όπως είναι τα ερημικά και τα θαλάσσια.

# 5.3.3. Οπτικές ιδιότητες αιωρούμενων σωματιδιών που παρατηρήθηκαν στην πολή του Βολού κατά τη διαρκεία της πειραματικής εκστρατείας Πανακεία (Ιούλιος 2019)

Στο πλαίσιο της τρίτης μελέτης μελετήθηκαν ο συντελεστής οπισθοσκέδασης και αποπόλωσης διαφορετικών ειδών αερολυμάτων όπως παρατηρήθηκαν στην πόλη του Βόλου κατά τη διάρκεια της πειραματικής εκστρατείας ΠΑΝΑΚΕΙΑ τον Ιούλιο του 2019. Ο Πίνακας 3 συνοψίζει τις μέσες τιμές αυτές.

Πίνακας 3. Μέσες τιμές και οι τυπικές αποκλίσεις του συντελεστή οπισθοσκέδασης και του συντελεστή αποπόλωσης αερολυμάτων στα 532 nm
για τις διάφορες στρωματώσεις που παρατηρήθηκαν στην πόλη του Βόλου, από το κινητό σύστημα lidar αποπόλωσης AIAS, κατά την καλοκαιρινή
εκστρατεία ΠΑΝΑΚΕΙΑ (07/2019) (Mylonaki, et al., 2021c).

Aerosol type	Mean±stdev	Range	Median						
Backscatter coefficient [sr <sup>-1</sup> Mm <sup>-1</sup> ] at 532 nm									
Continental Polluted and Marine	1.55±0.18	0.97-2.27	1.39						
Continental Polluted	1.38±0.23	0.87-2.05	1.37						
Smoke	1.43±0.19	1.21-1.84	1.39						
Dust Mixtures	1.19±0.23	0.38-1.98	1.31						
Particle linear depolarizati	on ratio [%] at 532 nm								
Continental Polluted and Marine	4±1	2-6	4						
Continental Polluted	4±1	2-5	4						
Smoke	6±1	3-9	5						
Dust Mixtures	20±4	13-29	20						

Σε ό,τι αφορά τα ηπειρωτικά ρυπασμένα αερολύματα Οι μέσες τιμές των συντελεστών  $\beta_{aer,532}$  και  $\delta_{aer,532}$  κυμάνθηκαν από 0.97 έως 2.27  $Mm^{-1}sr^{-1}$  και από 2 έως 6%, αντίστοιχα. Για αυτόν τον τύπο αερολύματος, οι Burton et al. (2013) πρότειναν μέσες τιμές  $\delta_{aer,532}$  που κυμαίνονται από 3 έως 5%, κάτι που συνάδει με τα ευρήματα της μελέτης μας.

Επιπρόσθετα, τα ηπειρωτικά ρυπασμένα σωματίδια παρουσίασαν μέσες τιμές του συντελεστή  $\beta_{aer,532}$  από 0.87 έως 2.05  $Mm^{-1}sr^{-1}$ , ενώ οι μέσες τιμές  $\delta_{aer,532}$  κυμάνθηκαν στο εύρος 3-5%, οι οποίες συμφωνούν με αυτά που αναφέρονται στη βιβλιογραφία (Burton, et al., 2013; Groß, et al., 2013; Müller, et al., 2007).

Ομοίως, οι στρωματώσεις αερολυμάτων καπνού παρουσίασαν μέσες τιμές β<sub>aer,532</sub> και δ<sub>aer,532</sub> στις περιοχές 1.21-1.84 Mm<sup>-1</sup>sr<sup>-1</sup> και 3-9%, αντίστοιχα. Παρατηρήθηκαν, ελαφρώς υψηλότερες τιμές δ<sub>aer,532</sub> για αυτόν τον τύπο αερολυμάτων σε σύγκριση με τις κατηγορίες αερολυμάτων ηπειρωτικών ρυπασμένων και μείξεων αυτών με θαλάσσια αερολύματα που, σύμφωνα με τη σχετική βιβλιογραφία, μπορούν να σχετίζονται με την ατμοσφαιρική γήρανση (Burton, et al., 2013). Ωστόσο, τα ευρήματά μας συμφωνούν με αυτά που αναφέρονται στη βιβλιογραφία (Burton, et al., 2013; Groß, et al., 2013; Murayama, et al., 2004).

Τέλος, οι μείξεις ερημικών αερολυμάτων παρουσίασαν μέσες τιμές  $\beta_{aer,532}$  και  $\delta_{aer,532}$  εντός των περιοχών 0.38-1.98  $Mm^{-1}sr^{-1}$  και 13-29%, αντίστοιχα. Αυτές οι τιμές  $\delta_{aer,532}$  είναι ενδεικτικές των στρωματώσεων αερολυμάτων που περιέχουν ερημικά σωματίδια προσμεμειγμένα με άλλου είδους αιωρούμενα σωματίδια (Burton, et al., 2012, 2013; Groß, et al., 2011, 2013, 2015).

# 5.3.4. Οπτικές και μικροφυσικές ιδιοτητές αιωρούμενων σωματιδιών καύσης βιομάζας που παρατηρήθηκαν στον σταθμό EARLINET της Αθηνάς (2011-2019)

Σε ό,τι αφορά την τέταρτη μελέτη και τις οπτικές και μικροφυσικές ιδιότητες των αερολυμάτων καύσης βιομάζας και μείξεων αυτών, οι στρωματώσεις καύσης βιομάζας παρουσίασαν μεσαίες τιμές του LR<sub>355</sub> (57±10 sr) και υψηλές τιμές του LR<sub>532</sub> (73±11 sr) που είναι σύμφωνες με εκείνες που αναφέρθηκαν σε προηγούμενες μελέτες σχετικά με αυτόν τον τύπο αερολυμάτων (Alados-Arboledas, et al., 2011; Baars, et al. al., 2012; Burton, et al., 2012; Müller, et al., 2005; Murayama, et al., 2004; Nicolae, et al., 2013; Samaras, et al., 2015). Επιπρόσθετα, οι υψηλές τιμές των ΑΕβ355/β532 και ΑΕβ532/β1064 (1.43-1.67±0.30) και οι σχετικά μεσαίες τιμές του r<sub>eff</sub> (0.24±0.14) υπέδειξαν μικρού μεγέθους αερολύματα, ενώ οι μικρές τιμές του V<sub>c</sub> (8.6±3.2 μm<sup>-3</sup>cm<sup>-3</sup>) ανέδειξαν μικρές συγκεντρώσεις αερολυμάτων. Από την άλλη πλευρά, οι υψηλές τιμές του SSA σε όλα τα μήκη κύματος (>0.9), οι υψηλές τιμές *n* και οι μικρές τιμές *k* υπέδειξαν περισσότερο σκεδαστικά και λιγότερο απορροφητικά αερολύματα (Amiridis, et al., 2012; Janicka, et al., 2017; Marenco , et al., 2011; Murayama, et al., 2004; Veselovskii, et al., 2002), που αποδίδεται στη ατμοσφαιρική γήρανση των αερολυμάτων καπνού.

Aerosol category S s+cp s+md **Optical properties** LR355 [sr] this study 57±10 51±5\* 39±5 literature 21-67 69±1 35-92 LR532 [sr] this study 59±10\*  $62\pm12$ 73±11 26-80 65±1 32-75 literature

Πίνακας 4. Μέσες τιμές των εντατικών οπτικών και μικροφυσικών ιδιοτήτων των στρωματώσεων αερολυμάτων καύσης βιομάζας (s) και μείξεων αυτών με ηπειρωτικά ρυπασμένα (s+cp) και ερημικά (s+md) που παρατηρήθηκαν στην Αθήνα από το σύστημα lidar EOLE κατά τη χρονική περίοδο 2011-2019. Συμπεριλαμβάνεται το εύρος των προαναφερθέντων ιδιοτήτων όπως αναφέρονται στη βιβλιογραφία για κάθε κατηγορία αερολύματος (Mylonaki, et al., 2021b).
		Aerosol category		
ΑΕα355/α532	this study	0.90±0.52	1.13±0.44*	0.49±0.88
	literature	0.64-2.3	1.35±0.02	0.50-1.70
ΑΕβ355/β532	this study	1.43±0.27	1.35±0.09*	1.56±0.21
	literature	~1.90		0.44-1.50
АЕβ532/β1064	this study	1.67±0.15	1.70±0.09*	1.58±0.14
	literature	~1.90		0.44-1.50
LR532/LR355	this study	1.27±0.36	1.17±0.34*	1.39±0.57
	literature	0.9-1.4		0.7-1.0
References		(Alados-Arboledas, et al., 2011; Baars, et al., 2012; Burton, et al., 2012; Müller, et al., 2005; Murayama, et al., 2004; Nicolae, et al., 2013; Samaras, et al., 2015)	(Mamouri, et al., 2012)	(Ansmann, et al., 2009; Giannakaki, et al., 2016; Soupiona, et al., 2020a)
Microphysical pro	perties			
reff [µm]	this study	0.24±0.14	0.24±0.13*	0.24±0.11
	literature	0.13-0.44	0.40±0.14	0.17-0.45
n	this study	1.49±0.06	1.50±0.07*	1.53±0.07
	literature	1.37-1.6	1.55±0.12	1.37-1.50
k	this study	0.013±0.004i	0.011±0.005i*	0.011±0.005i
	literature	0.001i-0.053i	0.06±0.02	0.004i-0.007i
Vc [µm <sup>-3</sup> cm <sup>-3</sup> ]	this study	8.6±3.2	20.7±14.1*	9.7±6.1
	literature	8-50		7.4-24.0
SSA 355 nm	this study	0.916±0.042	0.929±0.036*	0.928±0.037
	literature	0.760-0.890		0.948-0.964
SSA 532 nm	this study	0.932±0.023	0.936±0.024*	0.933±0.025
	literature	0.790-0.997	0.63±0.11	0.937-0.958
SSA 1064 nm	this study	$0.918 \pm 0.008$	0.923±0.031*	0.915±0.045*
	literature	0.740-0.980		
References		(Ansmann, et al., 2009; Balis, et al., 2003; Giannakaki, et al., 2016; Haarig, et al., 2018; Janicka, et al.,	(Mamouri, et al., 2012)	(Ansmann, et al., 2009; Janicka, et al., 2017; Soupiona, et al., 2020a)

Aerosol category

2017; Murayama, et al.,
2004; Nicolae, et al.,
2013; Ortiz-Amezcua,
et al., 2017; Samaras, et
al., 2015; Veselovskii,
et al., 2015; Wandinger,
et al., 2002)

Ομοίως, οι μείξεις καπνού με ηπειρωτικά ρυπασμένα αερολύματα εμφάνισαν μεσαίες τιμές των LR<sub>355</sub> (51±5 sr) και LR<sub>532</sub> (59±10 sr) που αναφέρθηκαν επίσης από τους Mylonaki et al. (2021a) σχετικά με αυτόν τον τύπο αερολύματος. Επιπρόσθετα, οι υψηλές τιμές των ΑΕβ355/β532 και ΑΕβ532/β1064 (1.35-1.70±0.09) και οι μεσαίες τιμές των ΑΕα355/α532 (0.24±0,13) υπέδειξαν το μικρό μέγεθος των αερολυμάτων. Ωστόσο, αυτή τη φορά, οι υψηλές τιμές του Vc (20.7±14.1 μm<sup>-3</sup>cm<sup>-3</sup>) υπέδειξαν σημαντικές συγκεντρώσεις αερολύματος. Επιπλέον, οι υψηλές τιμές του SSA σε όλα τα μήκη κύματος (>0.9), οι υψηλές τιμές του n (1.50±0.07) και οι μικρές τιμές k (0.011±0.005) υπέδειξαν περισσότερο σκεδαστικά και λιγότερο απορροφητικά αερολύματα (Adam, et al., 2020; Alados- Arboledas, et al., 2011; Amiridis, et al., 2012; Groß, et al., 2013; Janicka, et al., 2017; Marenco, et al., 2011; Müller, et al., 2005; Murayama, et al., 2004; Veselovskii, et al., 2002), το οποίο πιθανότατα να αποδίδεται στην ατμοσφαιρική γήρανση των παρατηρούμενων αερολυμάτων.

Τέλος, σε ό,τι αφορά στις μείξεις αερολυμάτων καπνού με ερημικά αερολύματα, ο λόγος lidar LR<sub>532</sub> βρέθηκε επίσης μεγαλύτερος (62±14 sr) από τον LR<sub>355</sub> (38±9 sr), παρουσιάζοντας μια διαφορά της τάξης των 24 sr μεταξύ των δύο μηκών κύματος. Παρατηρήθηκαν σχετικά μικρά αερολύματα με υψηλές τιμές των ΑΕβ355/β532 και ΑΕβ532/β1064 (1.56-1.58±0.21) και μικρές τιμές των ΑΕα355/α532 (0.24±0.11), ίδιες με τους άλλους τύπους αερολυμάτων που αναφέρθηκαν σε αυτή τη μελέτη, δείχνοντας την επικράτηση των χαρακτηριστικών των αερολυμάτων καύσης βιομάζας σε αυτό το μείγμα. Η απουσία άλλων σημαντικών διαφορών, εντός των ορίων του σφάλματος, μεταξύ των μέσων τιμών των μικροφυσικών ιδιοτήτων αυτού του τύπου αερολύματα καπνού είναι πράγματι κυρίαρχα στα προαναφερθέντα μείγματα.



Εικόνα 7. Συσχέτιση μεταξύ των μεταβλητών LR532/LR355 και του αριθμού των ωρών κατά τη διάρκεια των οποίων η αέρια μάζα κινήθηκε πάνω από περιοχές πηγών αερολυμάτων καύσης βιομάζας για α) στρωματώσεις αερολυμάτων καύσης βιομάζας β) στρωματώσεις αερολυμάτων καύσης βιομάζας και μείξεων αυτών με ηπειρωτικά ρυπασμένα αερολύματα (s+cp) που παρατηρήθηκαν στην Αθήνα από το σύστημα lidar EOLE κατά τη χρονική περίοδο 2011-2019. Ο αλγόριθμος SCAN που χρησιμοποιήθηκε για την κατηγοριοποίηση των αερολυμάτων είναι σε θέση να ανακτά τον χρόνο παραμονής (δηλαδή τον αριθμό των ωρών) μιας οπισθοτροχιάς HYSPLIT πάνω από μια περιοχή πηγής αιωρούμενων σωματιδίων καύσης βιομάζας (Mylonaki, et al., 2021b).

Ο αλγόριθμος SCAN παρείχε τον γρόνο παραμονής (δηλαδή τον αριθμό ωρών) μιας τροχιάς HYSPLIT, που σχετίζεται με κάθε στρωμάτωση, πάνω από τη μελετούμενη καμμένη περιοχή. Αυτή η πληροφορία σε σχέση με την παράμετρο του λόγου LR532/LR355 για κάθε στρωμάτωση αερολυμάτων των κατηγοριών καύσης βιομάζας και προσμείξων αερολυμάτων καύσης βιομάζας με ηπειρωτικά ρυπασμένα παρουσιάζεται στην Εικόνα 7.

Παρατηρείται ότι, η παράμετρος LR532/LR355 αυξάνεται με την αύξηση του αριθμού των ωρών που παρέμειναν οι αέριες μάζες πάνω από τις πηγές αιωρούμενων σωματιδίων καύσης βιομάζας, με αποτέλεσμα η συσχέτιση μεταξύ αυτών των δύο μεταβλητών να είναι αρκετά υψηλή (συντελεστής συσχέτισης  $R^2=0,82$ ). Από την άλλη πλευρά, ο συντελεστής συσχέτισης της παραμέτρου LR532/LR355 της κατηγορίας μείξεων καπνού με ηπειρωτικά ρυπασμένα με το χρόνο παραμονής των αέριων μαζών πάνω από τις πηγές αερολυμάτων καύσης βιομάζας ήταν εξαιρετικά χαμηλός (R<sup>2</sup>=0,01) αποδεικνύοντας την απουσία συσχέτισης μεταξύ των δύο μεταβλητών αυτής της κατηγορίας αερολυμάτων.

### 5.3.5. ΟΠΤΙΚΕΣ ΙΔΙΟΤΗΤΕΣ ΔΙΑΦΟΡΩΝ ΤΥΠΩΝ ΑΙΩΡΟΥΜΕΝΩΝ ΣΩΜΑΤΙΔΙΩΝ ΠΟΥ ΠΑΡΑΤΗΡΗΘΗΚΑΝ ΣΤΟΝ ΣΤΑΘΜΟ EARLINET ΤΗΣ ΑΘΗΝΑΣ (2014-2019)

Εκτός από τις προαναφερθείσες κατηγορίες αερολυμάτων, κι άλλοι τύποι αερολυμάτων παρατηρήθηκαν στο σταθμό lidar της Αθήνας. Στον Πίνακα 5 παρουσιάζουμε τις μέσες των εντατικών οπτικών ιδιοτήτων για κάθε μία από αυτές τις κατηγορίες αερολυμάτων.

κατά την περίοδο 2014-2019 (Mylonaki, et al., 2023a).							
Optical Property	Continental polluted	Continental Polluted+Marine	Dust	Dust mixtures			
Number of layers	10	6	3	11			
LR <sub>355</sub> [nm]	53±12	57±7	56±22	48±10			
LR532 [nm]	63±20	57±9	59±18	41±9			
ΑΕβ355/β532	1.5±0.3	0.9±0.2	-0.4±0.5	0.5±0.3			

Πίνακας 5. Μέσες τιμές οπτικών ιδιοτήτων για τις στρωματώσεις αερολυμάτων που παρατηρήθηκαν στην Αθήνα από το σύστημα lidar EOLE,

Τα ηπειρωτικά ρυπασμένα αερολύματα παρουσίασαν μεσαίες τιμές LR<sub>355</sub> ( $53\pm12$  sr) και LR<sub>532</sub> ( $63\pm20$  sr) και μεσαίες τιμές ΑΕβ355/β532 (1.5±0.3). Τα ευρήματα αυτά συμφωνούν με εκείνα που αναφέρθηκαν σε προηγούμενες μελέτες σχετικά με αυτόν τον τύπο αερολυμάτων (Burton, et al., 2013; Giannakaki, et al., 2010; Groß, et al., 2013; Mattis, et al., 2008; Müller, et al., 2007; Mylonaki, et al., 2021a).

Οι μείξεις ηπειρωτικών ρυπασμένων με θαλάσσια αερολύματα παρουσίασαν μεσαίες με υψηλές τιμές των λόγων LR355 (57±7 sr) και LR532 (57±9 sr) και μικρές τιμές ΑΕβ355/β532 (0.9±0.2). Οι μικρές τιμές ΑΕβ355/β532 είναι ενδεικτικές των μεγάλων αερολυμάτων, όπως τα θαλάσσια, ενώ οι αυξημένες τιμές LR532 είναι ενδεικτικότερες των ηπειρωτικών ρυπασμένων παρά των θαλάσσιων αερολυμάτων.

Τα ερημικά αερολύματα παρουσίασαν μεσαίες τιμές των λόγων LR<sub>355</sub> (56 $\pm$ 22) και LR<sub>532</sub> (59 $\pm$ 18) με τη δεύτερη να είναι η μεγαλύτερη από τις δύο. Επίσης, η μέση τιμή του συντελεστή ΑΕβ355/β532 βρέθηκε να είναι αρνητική (-0.4 $\pm$ 0.5) υποδεικνύοντας ότι η παράμετρος  $\beta_{aer,532}$  ξεπέρασε την παράμετρο  $\beta_{aer,532}$  μέσα σε αυτές τις στρωματώσεις αερολυμάτων, υποδεικνύοντας αερολύματα μεγάλου μεγέθους, όπως είναι αυτά της ερημικής σκόνης. Τέλος, οι μείξεις ερημικών αερολυμάτων έδειξαν μεσαίες προς μικρές τιμές LR355 (48±10 sr) και LR532 (41±9 sr) και μικρές τιμές ΑΕβ355/β532 (0.5±0.3), υποδεικνύοντας την ύπαρξη αερολυμάτων μεγάλου μεγέθους.

# 5.3.6. Επίπτωσεις αερολύματων που παρατηρηθηκάν από έναν τύπικο σταθμό lidar της ανατολικής Μεσογείου στο ενεργειακό ισοζύγιο της ατμοσφαίρας της περιοχής (2014-2019)

Οι οπτικές και μικροφυσικές ιδιότητες αερολυμάτων που υπολογίσθηκαν στις προηγούμενες παραγράφους, μπορούν να χρησιμοποιηθούν για τον υπολογισμό των επιδράσεων των αερολυμάτων στο ατμοσφαιρικό ισοζύγιο ακτινοβολίας της περιοχής μελέτης. Για αυτό το σκοπό, εισάγουμε μια νέα παράμετρο, effective DRE που ορίζεται ως εξής:

#### effective DRE= DRE/(AOD\*SZA)

εκφρασμένη σε Wm<sup>-2</sup> ανά μονάδα AOD και SZA, ώστε να μελετηθεί αποτελεσματικά η συνεισφορά στο DRE του κάθε τύπου αερολυμάτων. Με αυτόν τον τρόπο, τυχόν διαφορές στην τιμή της παραμέτρου effective DRE μεταξύ των διαφορετικών τύπων αερολυμάτων αποδίδονται στην τιμή SSA που χρησιμοποιήθηκε στο μοντέλο Libradtran ώστε να ληφθούν υπόψη διαφορετικά είδη αερολυμάτων. Τα αποτελέσματα παρουσιάζονται στην Εικόνα 8 για (a) την κορυφή της ατμόσφαιρας (TOA) και (b) την επιφάνεια του εδάφους (SRF) ξεχωριστά για κάθε παρατηρούμενη στρωμάτωση (συμπαγής κουκίδες και τετράγωνα). Οι σχετικές μέσες τιμές για κάθε κατηγορία παρουσιάζονται ως κενές κουκίδες και τετράγωνα, αντίστοιχα.



Εικόνα 8. Άμεση επίδραση στο γήινο ισοζύγιο ακτινοβολίας ανά μονάδα οπτικού βάθους αερολύματος (AOD) και μονάδα ζενίθειας γωνίας του ηλίου (SZA) (effective DRE) που προκαλείται από τις στρωματώσεις αιωρούμενων σωματιδίων που παρατηρήθηκαν στην Αθήνα κατά τη διάρκεια των ημερήσιων μετρήσεων lidar και υπό ανέφελες συνθήκες από το σύστημα lidar EOLE (2014-2019) (συμπαγείς κουκκίδες και τετράγωνα). Για κάθε τύπο αερολύματος (διαφορετικό χρωματισμό), δίνεται επίσης στο διάγραμμα η μέση τιμή της παραμέτρου effective DRE με την τυπική της απόκλιση (κενές κουκκίδες και τετράγωνα). α) effective DRE στην κορυφή της ατμόσφαιρας (TOA), β) effective DRE στην επιφάνεια της Γης (SRF) (Mylonaki, et al., 2023a).

Είναι προφανές ότι η επιλογή της τιμής της παραμέτρου SSA (0.94 για τα ηπειρωτικά ρυπασμένα αερολύματα και μείξεων αυτών και 0.96 για τα αερολύματα και τις μείξεις ερημικών αερολυμάτων) επηρέασε την παράμετρο DRE τόσο στην TOA (Εικόνα 8a), όσο και στην SRF (Εικόνα 8b), ανεξάρτητα από την τιμή της παραμέτρου AOD των παρατηρούμενων στρωματώσεων αερολυμάτων ή τη θέση του ήλιου (SZA) τη χρονική στιγμή παρατήρησης. Συγκεκριμένα, τα ηπειρωτικά ρυπασμένα αερολύματα αερολύματα

τιμές) συνεισφορά στο DRE, τοσο στην TOA, όσο και στην SRF (-4.6±1.4 και -7.4±2.2 Wm<sup>-2</sup> ανά μονάδα AOD και μονάδα SZA, αντίστοιχα) στην Αθήνα σε σύγκριση με τα αερολύματα ερημικής προέλευσης (Εικόνα 8b, μωβ χρώμα) που παρουσίασαν τη μεγαλύτερη συμβολή στο DRE (-10.6±3.1 και -18.9±7.5 Wm<sup>-2</sup> ανά μονάδα AOD και μονάδα SZA, αντίστοιχα). Η συμβολή των μειγμάτων αερολυμάτων (κόκκινο, κίτρινο και πράσινο χρώμα) στο DRE πάνω από την Αθήνα ήταν ενδιάμεση των δύο προαναφερθέντων τύπων.

και μονάδα SZA. Η π	και μονάδα SZA. Η παράμετρος DRE δίνεται σε [Wm <sup>-2</sup> ] και η παράμετρος HR σε [Kday <sup>-1</sup> ] (Mylonaki, et al., 2023a).						
	Continental polluted	Continental polluted+Marine	Continental polluted+Smoke	Dust	Mixed dust		
AOD	0.036±0.026	0.029±0.007	0.078±0.002	0.130±0.060	0.070±0.031		
eff. DRETOA	-4.6±1.4	-5.6±1.8	-7.3±1.6	-10.6±3.1	-6.7±2.1		
eff. DRE <sub>SRF</sub>	-7.4±2.2	-13.8±5.6	-13.5±1.6	-18.9±7.5	-10.69±5.4		
DRETOA	-10.3±10.6	-7.1±3.7	-28.1±9.9	-40.4±31.1	-22.7±11.6		
DRE <sub>SRF</sub>	-15.9±13.9	-14.4±5.3	-51.2±13.1	-72.2±58.3	-33.7±16.1		
HRTOA	0.13±0.48	-0.34±0.65	-0.13±0.14	0.03±0.61	-0.06±0.39		
HR <sub>SRF</sub>	-0.05±0.06	-0.03±0.02	-0.13±0.05	-0.17±0.15	-0.11±0.07		

Πίνακας 6. Μέσες τιμές και τυπικές αποκλίσεις των άμεσεων επιδράσεων στο ισοζύγιο ακτινοβολίας (DRE) και του ρυθμού θέρμανσης (HR) στην κορυφή της ατμόσφαιρας (TOA) και την επιφάνεια της Γης (SRF) διαφόρων τύπων αερολυμάτων που παρατηρήθηκαν στην Αθήνα από το σύστημα lidar EOLE (2014-2019), όπως υπολογίζονται από το μοντέλο Libradtran. Η παράμετρος effective DRE αναφέρεται στο DRE ανά μονάδα AOD και μονάδα SZA. Η παράμετρος DRE δίνεται σε [Wm<sup>-2</sup>] και η παράμετρος HR σε [Kday<sup>-1</sup>] (Mylonaki, et al., 2023a).

Oi μέσες τιμές των παραμέτρων DRE και HR, τόσο στην TOA όσο και στην SRF για κάθε τύπο αερολύματος, παρουσιάζονται, επίσης, στον Πίνακα 6. Oi μέσες τιμές των παραμέτρων DRE<sub>TOA</sub>, DRE<sub>SRF</sub> και HR<sub>SRF</sub> (- $40.4\pm31.1, -72.2\pm58.3$  και  $-0.17\pm0.15$  Wm<sup>-2</sup>, αντίστοιχα) βρέθηκαν να είναι μεγαλύτερες κατά απόλυτη τιμή σε σύγκριση με τα ηπειρωτικά ρυπασμένα ( $-10.3\pm10.6, -15.9\pm13.9$  και  $-0.05\pm0.06$  Wm<sup>-2</sup>, αντίστοιχα) και τις μείξεις αυτών με άλλα είδη αερολυμάτων ( $-7.1\pm3.7, -14.4\pm5.3$  and  $-0.03\pm0.02$  Wm<sup>-2</sup>), το οποίο αποδίδεται στη μεγαλύτερη τιμή της παραμέτρου AOD που εμφανίζουν αυτού του είδους τα αερολύματα ( $0.130\pm0.094$ ). Ωστόσο, όλοι οι τύποι αερολυμάτων παρουσίασαν αρνητική επίδραση στο DRE και στο HR στην SRF ενισχύοντας την άποψη ότι τα αερολύματα που υπάρχουν στη χαμηλότερη ατμόσφαιρα συνεισφέρουν στην ψύξη της ατμόσφαιρας.

Στην πραγματικότητα, η παράμετρος SZA παρουσιάζει τόσο ημερήσιες, όσο και ετήσιες διακυμάνσεις. Οι διακυμάνσεις αυτές για τη γεωγραφική θέση του ΕΜΠ (37.96°B, 23.78°A) κατά το 2022 παρουσιάζονται στην Εικόνα 9. Στη δεξιά πλευρά και κάτω της ίδια Εικόνας, παρουσιάζεται η ημερήσια διακύμανση της παραμέτρου SZA για την περίπτωση της 1<sup>ης</sup> Ιανουαρίου 2022. Έτσι, η επίδραση μιας στρωμάτωσης αερολυμάτων στις παραμέτρους DRE και HR παρουσιάζει διακυμάνσεις ανάλογα με την ημερομηνία και την ώρα παρατήρησής της.



**Εικόνα 9.** Ετήσια και ημερήσια (κάτω δεξιά) διακύμανση της ηλιακής ζενίθειας γωνίας του (SZA) για τη θέση του Εθνικού Μετσόβιου Πολυτεχνείου (37,96°B, 23,78°A). Οι ημερήσιες παραλλαγές SZA αναφέρονται στην 1η Ιανουαρίου 2022 (Mylonaki, et al., 2023a).

Λαμβάνοντας υπόψη τις διακυμάνσεις αυτές, στις Εικόνες 10 και 11 παρουσιάζουμε τις ετήσιες και ημερήσιες διακυμάνσεις των παραμέτρων DRE και HR για διάφορα είδη αερολυμάτων, υποθέτοντας μια σταθερή τιμή της παραμέτρου AOD για κάθε τύπο αερολυμάτων. Σημειώνουμε ότι απουσία ηλιακής ακτινοβολίας κατά τη διάρκεια της νύχτας δεν έχει ληφθεί υπόψη. Το πάχος των καμπυλών στις Εικόνες 10 και 11 εκφράζει τις ημερήσιες διακυμάνσεις της παραμέτρου DRE, ενώ η διαφορά μεταξύ της μικρότερης τιμής της παραμέτρου DRE στην αρχή και στο τέλος του έτους και της μεγαλύτερης τιμής στα μέσα Ιουλίου εκφράζει τις ετήσιες διακυμάνσεις της παραμέτρου DRE. Για παράδειγμα, μια στρωμάτωση ερημικών σωματιδίων (SSA=0,96, AOD=0,130) θα παρουσίαζε DRE -200 Wm<sup>-2</sup> στην TOA εάν είχε παρατηρηθεί στα μέσα Ιουλίου το μεσημέρι. Έτσι, οι ημερήσιες διακυμάνσεις της παραμέτρου SZA προκαλούν μεγαλύτερες διακυμάνσεις στην παράμέτρου DRE στην παράμετρο DRE στην παραμέτρου SZA προκαλούν μεγαλύτερες διακυμάνσεις στην παραμέτρου SZA προκαλούν μεγαλύτερες διακυμάνσεις στην παραμέτρου DRE στην παραμέτρου διας και της μεσήσιες διακυμάνσεις της παραμέτρου στην το παραμέτρου DRE. Έτσι, οι ημερήσιες διακυμάνσεις της παραμέτρου SZA προκαλούν μεγαλύτερες διακυμάνσεις στην παράμετρο DRE στην παράμετρο.



Εικόνα 10. Ετήσιες και ημερήσιες διακυμάνσεις της παραμέτρου DRE που προκαλούνται από στρωματώσεις ελεύθερης τροπόσφαιρας α) ηπειρωτικών ρυπασμένων αερολυμάτων (AOD=0,036), β) μείξεων ηπειρωτικών ρυπασμένων με θαλάσσια αερολύματα (AOD=0,029), γ) μείξεως ηπειρωτικών ρυπασμένων με θαλάσσια αερολύματα (AOD=0,029), γ) μείξεως ηπειρωτικών ρυπασμένων με αερολύματα καύσης βιομάζας (AOD =0,076), δ) ερημικών αερολυμάτων (AOD=0,130), ε) μείξεων ερημικών με άλλα είδη αερολυμάτων (AOD=0,070) στην κορυφή της ατμόσφαιρας (TOA) υπό τις διαφορετικές συνθήκες SZA. Οι διαφορετικές μεταξύ των κατηγοριών των αερολυμάτων εκφράζονται με διαφορετικές τιμές SSA εντός του Libradtran: ηπειρωτικά ρυπασμένα και μείξεις αυτών-SSA=0,94, ερημικά-SSA=0,96, μείξεις ερημικών με άλλα αερολύματα-SSA=0,95 (Mylonaki, et al., 2023a).

Οι επιπτώσεις των αιωρούμενων σωματιδίων στην SRF ανάλογα με την τιμή της παραμέτρου SSA είναι παρόμοιες με τις αντίστοιχες στην TOA με τη διαφορά ότι στην SRF οι τιμές είναι κατά δύο φορές μεγαλύτερες.



Εικόνα 11. Ετήσιες και ημερήσιες διακυμάνσεις της παραμέτρου DRE που προκαλούνται από στρωματώσεις ελεύθερης τροπόσφαιρας α) ηπειρωτικών ρυπασμένων αερολυμάτων (AOD=0,036), β) μείξεων ηπειρωτικών ρυπασμένων με θαλάσσια αερολύματα (AOD=0,029), γ) μείξεως ηπειρωτικών ρυπασμένων με αερολύματα καύσης βιομάζας (AOD =0,076), δ) ερημικών αερολυμάτων (AOD=0,130), ε) μείξεων ερημικών με άλλα είδη αερολυμάτων (AOD=0,070) στην επιφάνεια του εδάφους (SRF) υπό τις διαφορετικές συνθήκες SZA. Οι διαφορετικές μεταξύ των κατηγοριών των αερολυμάτων εκφράζονται με διαφορετικές τιμές SSA εντός του Libradtran: ηπειρωτικά ρυπασμένα και μείξεις αυτών-SSA=0,94, ερημικά-SSA=0,96, μείξεις ερημικών με άλλα αερολύματα-SSA=0,95 (Myonaki, et al., 2023a).

# 5.3.7. Επιπτώσεις αιωρούμενων σωματιδιών καύσης βιομάζας από τις καταστροφικές πυρκαγιές στη βορεία Αττική και Ευβοία τον Αυγούστο του 2021 στο ενεργειακό ισοζύγιο της ατμοσφαίρας της περιοχής

Ταυτόχρονα, παρουσιάζουμε τις επιπτώσεις των αερολυμάτων καύσης βιομάζας από ένα μεγάλης έντασης επεισόδιο δασικής πυρκαγιάς που σημειώθηκε στην Ελλάδα τον Αύγουστο του 2021 και καταγράφηκε από το δορυφόρο CALIPSO στις 8 του ίδιου μήνα.



**Εικόνα 12.** (Μαύρος άξονας) Κατακόρυφη κατανομή του συντελεστή εξασθένησης από το δορυφόρο CALIPSO που αφορά τη σύσταση της ατμόσφαιρας περίπου 120 km βόρεια της Αθήνας την 8 Αυγούστου 2021, 01:15:10. UTC. (Κόκκινος άξονας) Κατακόρυφη κατανομή του ρυθμού θέρμανσης (HR) που προκλήθηκε από την παρουσία της συγκεκριμένης στρωμάτωσης αιωρούμενων σωματιδίων (Mylonaki, et al., 2023a).

Στην Εικόνα 12 παρουσιάζουμε το συντελεστή α<sub>aer,532</sub> (μαύρο) και την παράμετρο HR (κόκκινο) από το έδαφος έως και 5 km ύψος. Η στρωμάτωση αερολυμάτων έγινε εμφανής στα ύψη μεταξύ 0.5-1.5 km, όπου ο συντελεστής α<sub>aer,532</sub> πήρε τη μεγαλύτερη τιμή του (~800 Mm<sup>-1</sup>). Αυτή η στρωμάτωση αερολυμάτων, η οποία κατηγοριοποιήθηκε από το δορυφόρο ως στρωμάτωση αερολυμάτων καπνού, επηρέασε το ρυθμό θέρμανσης της ατμόσφαιρας που περιγράφεται από την παράμετρο HR.

Συγκεκριμένα, κάτω από τη βάση της στρωμάτωσης παρατηρήθηκαν αρνητικές τιμές της παραμέτρου HR (0.5 Kd<sup>-1</sup>) το οποίο αποδεικνύει ότι λιγότερη ακτινοβολία έφτασε στο έδαφος σε σύγκριση με αυτή που θα έφτανε εάν δεν υπήρχε η στρωμάτωση αερολυμάτων και το οποίο είναι περίπου 5 φορές πάνω από το μέσο HR που προκαλούν οι συνήθεις στρωματώσεις αερολυμάτων στην επιφάνεια του εδάφους στην περιοχή της Αθήνας. Σταδιακά, η παράμετρος HR αυξάνεται με το ύψος και λαμβάνει τη μέγιστη τιμή της (6 Kd<sup>-1</sup>) σε περίπου 1 km πάνω από την κορυφή της, αποδεικνύοντας ότι η αλληλεπίδρασή των στρωματώσεων τέτοιου είδους αερολυμάτων με την ακτινοβολία (σκέδαση και απορρόφηση) αύξησε τη θερμοκρασία στα ύψη όπου παρατηρήθηκε κατά 4.5 Kd<sup>-1</sup>.

Η στρωμάτωση αυτή προκάλεσε DRE -222(101) Wm<sup>-2</sup> στην επιφάνεια του εδάφους(στην κορυφή της ατμόσφαιρας). Ωστόσο, η παράμετρος effective DRE παρουσίασε τιμές -12(-5) Wm<sup>-2</sup> ανά μονάδα AOD και μονάδα SZA στην επιφάνεια του εδάφους(στην κορυφή της ατμόσφαιρας), οι οποίες συγκρινόμενες με αυτές των τύπων αερολυμάτων που ανακτήθηκαν στην προηγούμενη μελέτη και ειδικά με αυτές των ερημικών αερολυμάτων, είναι μικρότερες, επισημαίνοντας ότι μια στρωμάτωση ερημικών αερολυμάτων με την ίδια τιμή AOD που παρατηρείται στην ίδια περιοχή την ίδια ώρα και ημερομηνία του έτους, θα είχε ως αποτέλεσμα ένα ακόμη μεγαλύτερο DRE τόσο στην επιφάνεια του εδάφους της περιοχής όσο και στην κορυφή της ατμόσφαιρας.

# 5.3.8. Ρύθμος δόσης αιώρουμενών σωματιδιών καύσης βιομάζας από τις κατάστροφικές πυρκαγιές στη βορεία Αττική και Ευβοία τον Αυγούστο του 2021 στο ανθρωπινό αναπνευστικό σύστημα

Αναφερόμενοι στις δασικές πυρκαγιές στη βόρεια Αττική και βόρεια Εύβοια τον Αυγούστου 2021, σε αυτό το Κεφάλαιο μελετάμε το ρυθμό δόσης των αερολυμάτων που εκπέμπθηκαν από αυτές στο ανθρώπινο αναπνευστικό σύστημα.

Συγκεκριμένα, οι καταστροφικές δασικές πυρκαγιές στις οποίες αναφερόμαστε σημειώθηκαν στη βόρεια Αττική και βόρεια Εύβοια στις 3 έως τις 10 Αυγούστου 2021 (κάηκαν πάνω από 125000 στρέμματα δάσους και καλλιεργήσιμης γης), εκπέμποντας μεγάλη ποσότητα αιωρούμενων σωματιδίων καύσης βιομάζας. Λόγω των βόρειων ανέμων που επικρατούσαν, τα σωματίδια αυτά μεταφέρθηκαν στην Αθήνα, με αποτέλεσμα σημαντική υποβάθμιση της ποιότητας του αέρα (η συγκέντρωση μάζας PM<sub>10</sub> έφτασε την τιμή των 100 μg m<sup>-3</sup>). Οι συνεχείς αναζωπυρώσεις των πυρκαγιών και οι περιφερειακές μετεωρολογικές συνθήκες, είχαν ως αποτέλεσμα να διατηρηθούν τα αερολύματα αυτά πάνω από την Αθήνα για αρκετές ημέρες. Οι πυρκαγιές ήταν απόρροια ενός ιστορικού και μακροχρόνιου καύσωνα που σημειώθηκε στις 26 Ιουλίου-10 Αυγούστου 2021, με τις μέγιστες θερμοκρασίες να αγγίζουν τους 47.1 βαθμούς Κελσίου, σύμφωνα με την Εθνική Μετεωρολογική Υπηρεσία. Λόγω των νότιων ανέμων που επικρατούσαν κατά τη διάρκεια του καύσωνα (1-3 Αυγούστου), αερολύματα σκόνης μεταφέρθηκαν από τη βόρεια Αφρική προς την Αθήνα και αναμείχθηκαν με αερολύματα καύσης βιομάζας. Ως αποτέλεσμα, παρατηρήθηκαν μείξεις των δύο τύπων αερολυμάτων στην Αθήνα κατά τη διάρκεια του πρώτου εικοσαήμερου του Αυγούστου 2021.

Η μεταφορά σκόνης από τη Σαχάρα προς την Ιταλία και την Ελλάδα είναι εμφανής για τη χρονική περίοδο 1-3 Αυγούστου 2021, όπως παρουσιάζεται από την προσομοίωση ΝΜΜΕ-DREAM στην Εικόνα 13.



Εικόνα 13. Οπτικό βάθος ερημικής σκόνης (DOD) όπως αντιπροσωπεύεται από το μοντέλο NMME-DREAM στις 12:00 UTC την 1η Αυγούστου 2021 (επάνω), στις 2 Αυγούστου 2021 (μέση) και στις 3 Αυγούστου 2021 (κάτω) (Mylonaki, et al., 2023b).

Η προέλευση των αερίων μαζών που φθάνουν στο σταθμό του ΕΚΕΦΕ-Δημόκριτος (σταθμός DEM, 37.99°B, 23.82°A, 275 m υψόμετρο) κατά την περίοδο μέτρησης εξετάζεται με το μοντέλο FLEXPART-WRF (Εικόνα 14).



Εικόνα 14. Εκπομπή (log [sm<sup>3</sup> kg<sup>-1</sup>]) των αερίων μαζών που φθάνουν στο σταθμό DEM στις 4,7,10 και 18 Αυγούστου 2021. Κάθε οπισθοτροχιά αντιπροσωπεύει ένα διάστημα 6 ωρών (00:00, 06:00, 12: 00, 18:00, 23:59) προς τα πίσω χρονικά για 24 ώρες. Η πηγή αέριας μάζας είναι τροποσφαιρικό στρώμα 0-5 km και ο υποδοχέας είναι η επιφάνεια του σταθμού (37,99°B, 23,82°A, 275 m υψόμετρο). Η κόκκινη κουκκίδα υποδηλώνει τη θέση του σταθμού (Mylonaki, et al., 2023b).

Η προέλευση των αερίων μαζών σε 4 6-ωρα χρονικά διαστήματα για τις ημερομηνίες 4, 7, 10 και 18 Αυγούστου 2021 παρουσιάζεται στην Εικόνα 14. Όπως παρουσιάζεται σε αυτά τα γραφήματα, ο σταθμός επηρεάστηκε τόσο από τοπικές πηγές όσο και από μεταφορά σωματιδίων από τις πυρκαγιές στην Αττική και Εύβοια, ανάλογα με την ώρα. Στις 4, 7 και 18 Αυγούστου, ο σταθμός επηρεάστηκε κυρίως από πηγές του βόρειου τομέα, μεταφέροντας καπνό από τις πυρκαγιές της Εύβοιας και τις τοπικές πυρκαγιές στο Λεκανοπέδιο Αττικής. Στις 10 Αυγούστου, οι πιο στάσιμες μετεωρολογικές συνθήκες είναι εμφανείς. Έτσι, οι αέριες μάζες που ανιχνεύονται στο σταθμό αναμένεται να είναι αερολύματα καύσης βιομάζας από φωτιές που υπάρχουν ακόμα στο Λεκανοπέδιο Αττικής και δεν παρουσιάζονται στην Εικόνα 14 ως κόκκινες κουκίδες λόγω της χαμηλής θερμοκρασίας τους.

Τα σκιασμένα τμήματα στην Εικόνα 15 παρουσιάζουν τις χρονικές περιόδους του Αυγούστου 2021 όταν οι συγκεντρώσεις μάζας PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub>, PM<sub>1</sub> και/ή OC και EC (Εικόνα 15a, έγχρωμες γραμμές) υπερέβησαν τις

αντίστοιχες ετήσιες ή μηνιαίες μέσες τιμές (Εικόνα 15a, έγχρωμοι κύκλοι) του Αυγούστου 2013 (Amato, et al., 2016; Diapouli, et al., 2017), καθώς και τα όρια της ποιότητας του αέρα του Παγκόσμιου Οργανισμού Υγείας (ΠΟΥ) και της Ευρωπαϊκής Ένωσης (ΕΕ) (Εικόνα 15a, διακεκομμένες γραμμές). Η Εικόνα 15b παρέχει τις ίδιες πληροφορίες με την Εικόνα 15a αλλά για τις αναλογίες PM<sub>2,5</sub>/PM<sub>10</sub> (κόκκινη γραμμή) και PM<sub>1</sub>/PM<sub>10</sub> (μπλε γραμμή), οι οποίες όταν πλησιάζουν τη μονάδα αποκαλύπτουν την επικράτηση μικρότερων αερολυμάτων, όπως αυτά της καύσης βιομάζας, ενώ όταν είναι πιο κοντά στο μηδέν επικρατούν τα μεγαλύτερα αερολύματα, όπως η ερημική σκόνη.



Εικόνα 15. α) Συγκέντρωση μάζας (μg m<sup>-3</sup>) PM<sub>1</sub>, PM<sub>2.5</sub>, PM<sub>10</sub>, OC και EC (έγχρωμες συμπαγείς γραμμές), οι αντίστοιχες ετήσιες ή μηνιαίες μέσες τιμές (έγχρωμοι κύκλοι) και τα αντίστοιχα όρια ποιότητας αέρα κατά WHO και EE (διακεκομμένες γραμμές). β) Αναλογίες PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub> και PM<sub>1</sub>/PM<sub>10</sub> (παχιές έγχρωμες γραμμές) και ετήσια μέση τιμή αναλογίας αερολυμάτων υποβάθρου και ερημικής σκόνης (έγχρωμοι κύκλοι και τετράγωνα). Όλα τα δεδομένα μετρήθηκαν στο σταθμό DEM, τη χρονική περίοδο 1-18 Αυγούστου 2021. Οι σκιασμένες περιοχές αντιπροσωπεύουν τις χρονικές περιόδους κατά τις οποίες τα PM<sub>10</sub> ξεπέρασαν τις μέσες ετήσιες τιμές τους (20 μg m<sup>-3</sup>) (Mylonaki, et al., 2023b).

Οι συγκεντρώσεις μάζας των PM<sub>10</sub> ξεπέρασαν τις ετήσιες μέσες τιμές τους (20 μg m<sup>-3</sup>) κατά τη διάρκεια 5 χρονικών περιόδων (Εικόνα 15 σκιασμένες περιοχές), στο χρονικό διάστημα 1-18 Αυγούστου 2021, υποδεικνύοντας τους χρόνους μεταφοράς ερημικών αερολυμάτων από την Αφρική ή καύσης βιομάζας από τις δασικές πυρκαγιές στο σταθμό μέτρησης DEM. Συγκεκριμένα, και σε σχέση με την Εικόνα 13, η χρονική περίοδος 1-3 Αυγούστου χαρακτηρίζεται από την ύπαρξη ερημικών αερολυμάτων, ενώ η χρονική περίοδος 4-5 Αυγούστου από ερημικά σωματίδια αναμεμειγμένα με αερολύματα καπνού, και, τέλος, οι ημέρες 7, 10 και 18 χαρακτηρίζονται από την ύπαρξη αερολυμάτων καπνού από τις πυρκαγιές που εκδηλώθηκαν στο Λεκανοπέδιο Αττικής και στη βόρεια Εύβοια. Εκτός από αυτές τις χρονικές περιόδους, αερολύματα καύσης βιομάζας μπορεί να μεταφέρθηκαν στην Αθήνα και άλλες ημέρες εντός της χρονικής περιόδου 1-18 Αυγούστου, όπως για παράδειγμα υποδηλώνει η αναλογία PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub> στην Εικόνα 15α τις πρώτες πρωινές ώρες στις 8 Αυγούστου. Έτσι, οι μη επισημασμένες χρονικές περίοδοι εντός της χρονικής περιόδου 1-18 Αυγούστου αυτιπροσωπεύουν τα επίπεδα αερολυμάτων υποβάθρου της τοποθεσίας DEM για το πρώτο εικοσαήμερο του Αυγούστου, τα οποία επηρεάζονται κυρίως από τη μεταφερόμενη ρύπανση από την αστική περιοχή της Αθήνας και, εν μέρει (π.χ. 8-09 Αυγ.), από τα εναπομείναντα αερολύματα καπνού.

Επιπροσθέτως, η συγκέντρωση μάζας OC και EC ήταν μεγαλύτερη κατά τις χρονικές περιόδους που παρατηρούνται αερολύματα καύσης βιομάζας (~14 μg m<sup>-3</sup> και ~2 μg m<sup>-3</sup> για OC και EC, αντίστοιχα, Πίνακας 119

7), σε σύγκριση με τις άλλες δύο κατηγορίες αερολυμάτων [(μεικτά) ~6 μg m<sup>-3</sup> και ~1 μg m<sup>-3</sup>, (σκόνη) ~4 μg m<sup>-3</sup> και 1 μg m<sup>-3</sup>, για OC και EC, αντίστοιχα, Πίνακας 7)], καθώς, και σε σύγκριση με τα αερολύματα υποβάθρου που εμφάνισαν τις μικρότερες μέσες τιμές (~3 μg m<sup>-3</sup> και ~0,3 μg m<sup>-3</sup>, για OC και EC, αντίστοιχα, Πίνακας 7) αναδεικνύοντας την οργανική σύσταση των αερολυμάτων καπνού κατά τις σχετικές χρονικές περιόδους. Η περίοδος μείξεων ερημικής σκόνης εμφάνισε τιμές συγκέντρωσης μάζας (~6 μg m<sup>-3</sup> και ~1 μg m<sup>-3</sup>, για OC και EC, αντίστοιχα, Πίνακας 7) ενδιάμεσες σε αυτές της σκόνης (~4 μg m<sup>-3</sup> και ~1 μg m<sup>-3</sup>, για OC και EC, αντίστοιχα, Πίνακας 7) και καπνού (~14 μg m<sup>-3</sup> και ~2 μg m<sup>-3</sup>, για OC και EC, αντίστοιχα, Πίνακας 7).

Οι ρυθμοί δόσης εναπόθεσης PM στο ανθώπινο αναπνευστικό σύστημα (ET+TB+Al), για τη χρονική περίοδο 1-18 Αυγούστου 2021, για υδρόφοβα (έγχρωμες συμπαγείς γραμμές) και υγροσκοπικά σωματίδια (έγχρωμες διακεκομμένες γραμμές), χρησιμοποιώντας τα μοντέλα δοσιετρίας RETRAC (μπλε), ExDoM2 (πράσινο) και MPPD (κόκκινο) παρουσιάζονται στην Εικόνα 16a. Οι σκιασμένες περιοχές είναι όπως στην Εικόνα 15α. Ο ρυθμός μάζας για κάθε τύπο αερολύματος και μοντέλο δοσιμετρίας για το ανώτερο και κατώτερο αναπνευστικό σύστημα παρουσιάζεται στην Εικόνα 16b, λαμβάνοντας υπόψη την υγροσκοπικότητα (κ=0,3) ή όχι (κ=0) των αερολυμάτων και υποθέτοντας διαφορετικές τιμές ανάπτυξης σωματιδίων (β) (0 για ξηρό και 0,1, 0,3, 0,5, 0,7, 0,9 για υδροσκοπικά σωματίδια). Τα ποσοστά αναφέρονται στις μέσες τιμές των συνολικών ρυθμών εναπόθεσης μάζας κάθε κατηγορίας αερολύματος (Πίνακας 7).



**Εικόνα 16.** α) Ρυθμός εναπόθεσης μάζας (μg h<sup>-1</sup>) PM, για υδρόφοβα (έγχρωμες συμπαγείς γραμμές) και υγροσκοπικά σωματίδια (έγχρωμες διακεκομμένες γραμμές) στο ανθρώπινο αναπνευστικό σύστημα από τα τρία διαφορετικά μοντέλα δοσιμετρίας. β) Ρυθμός εναπόθεσης μάζας (%) για (1) ερημικά, (2) μείξεων, (3) καύσης βιομάζας υποθέτωντας υδρόφοβα (dry) ή υγροσκοπικά σωματίδια (κ=0,3) στο ανώτερο (κόκκινες μπάρες) και κατώτερο (μπλε μπάρες) αναπνευστικό σύστημα, αποτέλεσμα των μοντέλων δοσιμετρίας. Γα ποσοστά αναφέρονται στις μέσες τιμές των ρυθμών εναπόθεσης μάζας κάθε κατηγορίας αερολύματος (Πίνακας 7). Όλα τα δεδομένα μετρήθηκαν στο σταθμό DEM, τη χρονική περίοδο 1-18 Αυγούστου 2021. Οι σκιασμένες περιοχές αντιπροσωπεύουν τις χρονικές περιόδους κατά τις οποίες τα PM<sub>10</sub> ξεπέρασαν τις μέσες τιμές τους (20 μg m<sup>-3</sup>) (Mylonaki, et al., 2023b).

Συνολικά, οι ρυθμοί εναπόθεσης αερολυμάτων στο ανθρώπινο αναπνευστικό (Εικόνα 16a) ακολούθησαν τις τάσεις των κατανομών συγκέντρωσης μάζας PM (Εικόνα 15a). Για παράδειγμα, οι ρυθμοί εναπόθεσης ερημικών αερολυμάτων και μείζεων αυτών με αερολύματα καύσης βιομάζας εμφάνισαν μεγαλύτερες τιμές (έως 90 μg h<sup>-1</sup>) από αυτούς της κατηγορίας καύσης βιομάζας (<40 μg h<sup>-1</sup>). Αυτό υπογραμμίζει το ρόλο της συγκέντρωσης μάζας των PM στην εναπόθεσή τους στο ανθρώπινο αναπνευστικό σύστημα. Επιπλέον, παρατηρήθηκε θετική συσχέτιση μεταξύ των τιμών της αύξησης του μεγέθους των αερολυμάτων (παράμετρος β που θεωρείται στο μοντέλο RETRAC) και των ρυθμών δόσης εναπόθεσης μάζας στο αναπνευστικό σύστημα υποδηλώνοντας ότι όσο μεγαλύτερες είναι οι τιμές του β (δηλ. 0,9 σε σύγκριση με 0,1), τόσο μεγαλύτερος είναι ο ρυθμός εναπόθεσής τους στο ανθρώπινο αναπνευστικό (ανοιχτό μπλε διακεκομμένες γραμμές σε σύγκριση με σκούρες μπλε διακεκομμένες γραμμές, Εικόνα 16α), επιβεβαιώνοντας τα ευρήματα των Mitsakou et al. (2005, 2007).

Ένα μεγαλύτερο ποσοστό αερολυμάτων καπνού (20%-45%), ανάλογα με την παράμετρο β που αντανακλά την ανάπτυξη των σωματιδίων, εναποτέθηκε βαθύτερα στην ανθρώπινη RT ανά ώρα (Εικόνα 16b3, μπλε στήλες), από αυτήν των ερημικών και μείξεων αυτών (<20%, Εικόνα 16b1, μπλε στήλες). Αυτό, πιθανότατα, οφείλεται στο μεγάλο μέγεθος των συγκεκριμένων αερολυμάτων, τα οποία εναποτίθενται, κυρίως, στην εξωθωρακική περιοχή, ενώ τα μικρότερα αερολύματα διεισδύουν ευκολότερα στη θωρακική περιοχή (Hinds, et al., 1999). Ταυτόχρονα, μικρότερο ποσοστό υγροσκοπικών σωματιδίων καπνού (<40%) εναποτέθηκε στη θωρακική περιοχή (Eικόνα 16b3, μπλε στήλες, κ=0,3,  $\beta \neq 0$ ), σε σύγκριση με τα υδρόφοβα (~40%· Εικόνα 16b3, μπλε στήλες, κ=0,3, στήλες, του μοντέλου RETRAC, πιθανότατα λόγω της αύξησης του μεγέθους τους, ευνοώντας την αδρανειακή πρόσκρουση στην εξωθωρακική περιοχή από την καθίζηση και διάχυση Brown στη θωρακική περιοχή.

Από την άλλη πλευρά, ενώ οι προβλέψεις του μοντέλου RETRAC ακολούθησαν την τάση «αυξημένη υγροσκοπικότητα-μειωμένη εναπόθεση στη θωρακική περιοχή», τόσο για τα ερημικά όσο και για τις μείξεις αυτών (Εικόνα 16b1 και 2, αντίστοιχα), όπως υποδεικνύεται από τον Asgharian, (2004), δεν ισχύει το ίδιο για τις προβλέψεις ExDoM2 για αυτούς τους τύπους αερολυμάτων. Οι προβλέψεις ExDoM2 για τα ερημικά σωματίδια και τις μείξεις αυτών (Εικόνα 16b1 και 2, αντίστοιχα) έδειξαν μια αναλογική αύξηση του ρυθμού εναπόθεσης στη θωρακική περιοχή με την αύξηση της υγροσκοπικότητας, αποκαλύπτοντας μια ασυμφωνία μεταξύ των μοντέλων που αφορούν την εναπόθεση στα επιμέρους συστήματα του ανθρώπινου αναπνευστικού συστήματα του αναπνευστικού είναι σχεδόν τα ίδια λόγω της επικράτησης των ερημικών αερολυμάτων στις στρωματώσεις μείξεων.

		Dust	Dust mixed with smoke	Smoke	Background August 2021
	PM10	40.62±6.95	40.75±8.99	36.46±19.07	8.89±3.64
	PM <sub>2.5</sub>	15.53±2.69	17.51±6.57	28.36±16.59	5.90±2.45
	$\mathbf{PM}_{1}$	11.0±3.75	12.33±7.31	21.11±18.44	5.13±2.57
	PM <sub>2.5</sub> /PM <sub>10</sub>	0.39±0.07	$0.42 \pm 0.06$	0.76±0.10	$0.67 \pm 0.08$
	$PM_1/PM_{10}$	0.29±0.07	0.33±0.07	0.73±0.11	0.62±0.09
	OC	4.14±1.06	6.06±2.49	14.39±5.49	3.34±1.23
	EC	0.65±0.27	1.00±0.42	1.76±0.93	0.37±0.23
Aerosol Total Mass Deposition Dose Rates ( $\mu g h^{-1}$ )					
ExDoM2	к=0	45.11±11.00	42.94±7.03	20.98±10.71	6.29±2.99

Πίνακας 7. Μέσες τιμές των διαφόρων παραμέτρων που παρουσιάστηκαν σε αυτή τη μελέτη για ερημικά, καύσης βιομάζας και ανθρωπογενή αερολύματα καθώς και μείζεων αυτών (Mylonaki, et al., 2022b).

	к=0.3	48.95±11.27	47.04±7.95	26.97±12.95	7.65±3.31
RETRAC	β=0	48.09±10.55	45.21±7.40	25.49±12.62	7.44±3.29
	β=0.1	49.62±11.11	47.21±7.44	24.47±11.87	7.49±3.35
	β=0.3	52.06±11.73	49.81±7.76	25.61±13.00	7.82±3.49
	β=0.5	57.06±12.72	54.26±8.35	27.49±13.33	8.51±3.75
	β=0.7	61.91±13.79	58.88±9.00	29.59±13.82	9.24±4.03
	β=0.9	66.82±14.79	63.52±9.71	31.96±14.80	10.00±4.32
MPPD		47.47±12.48	43.38±8.33	20.98±5.66	6.64±3.02
OC Total Mass Deposi	ition Dose Rates (µg h-1)	)			
ExDoM2	к=0	2.83±0.55	3.77±1.11	4.64±1.81	1.34±0.41
	к=0.3	3.68±0.69	4.96±1.47	7.72±1.81	2.06±0.66
RETRAC	β=0	3.10±0.64	4.58±1.39	7.40±2.85	1.91±0.69
	β=0.5	4.31±0.77	5.69±1.57	7.86±3.10	2.14±0.76
MPPD		1.82±0.76	2.18±0.93	5.30±1.94	1.24±0.42
OP Total Mass Deposi	tion Dose Rates (pmol r	$nin^{-1}h^{-1}$ )			
ExDoM2	к=0	-	648.89±216.03	400.08±78.74	258.01±83.90
	к=0.3	-	710.24±236.75	494.48±84.49	316.55±97.11
RETRAC	β=0	-	689.85±229.95	476.27±69.17	306.46±92.74
	β=0.1	-	708.78±236.26	464.47±64.48	307.40±93.61
	β=0.3	-	747.47±249.16	487.96±63.60	321.52±98.59
	β=0.5	-	814.20±271.40	524.41±75.65	351.11±109.04
	β=0.7	-	826.10±294.51	562.96±89.67	382.37±119.86
	β=0.9	-	953.79±317.93	607.37±98.39	414.53±131.33
MPPD		-	650.76±216.92	415.28±99.17	269.18±86.60
OPDTTv (nmol min <sup>-1</sup> m <sup>-1</sup>	3)				
		-	0.08	0.22±0.02	0.06±0.02
OP <sup>DTTm</sup> (pmol min <sup>-1</sup> h <sup>-1</sup>	<sup>1</sup> )				
		-	13.88±2.31	31.75±2.20	43.37±4.00

Στην Εικόνα 16 παρουσιάζονται οι ίδιες παραμέτροι με την Εικόνα 15, λαμβάνοντας, αυτή τη φορά, υπόψη τις συγκεντρώσεις μάζας ΟC και υποθέτοντας μόνο την ανάπτυξη σωματιδίων που αντιπροσωπεύεται από την τιμή β=0.5 στο μοντέλο RETRAC.

Γενικά, τα αποτελέσματα που παρουσιάζονται στην Εικόνα 16 είναι παρόμοια με αυτά της Εικόνας 15. Για παράδειγμα, όπως σημειώθηκε προηγουμένως, όταν οι συγκεντρώσεις μάζας OC είναι μεγαλύτερες (Εικόνα 14a), το ίδιο ισχύει και για τους ρυθμούς εναπόθεσης μάζας OC στο αναπνευστικό σύστημα, συνολικά (Εικόνα 16a). Συγκεκριμένα, ο ρυθμός εναπόθεσης εμφάνισε μεγαλύτερες τιμές με την εμφάνιση αερολυμάτων καύσης βιομάζας (>6 μg h<sup>-1</sup>). Ταυτόχρονα, μεγαλύτερα ποσοστά εναπόθεσης καπνού (Εικόνα 16b) παρατηρήθηκαν στη θωρακική περιοχή (>40%) σε σύγκριση με αυτά που εισχώρησαν σε αυτήν κατά τη διάρκεια εμφάνισης αερολυμάτων ερημικής σκόνης και μείξεων (<40%). Επιπλέον, τα ποσοστά εναπόθεσης μάζας OC όλων των τύπων αερολυμάτων στη θωρακική περιοχή ήταν μεγαλύτερα (>20%, >20% και >40% για τα ερημικά, μείξεις και καπνού, αντίστοιχα) σε σύγκριση με τα αντίστοιχα PM (<20%, <20% και 20-40% για τα ερημικά, μείξεις και καπνού, αντίστοιχα Εικόνα 15b). Αυτό το εύρημα αποκαλύπτει το ρόλο της χημικής σύστασης των αερολυμάτων στην εναπόθεσή τους στο ανθρώπινο αναπευστικό σύστημα. Επομένως, ο ρόλος των σωματιδίων OC πρέπει να λαμβάνεται υπόψη, κατά την εκτίμηση της εναπόθεσης αερολυμάτων στο αναπνευστικό σύστημα.



Εικόνα 16. α) Ρυθμός εναπόθεσης μάζας (μg h<sup>-1</sup>) OC, για υδρόφοβα (έγχρωμες συμπαγείς γραμμές) και υγροσκοπικά σωματίδια (έγχρωμες διακεκομμένες γραμμές) στο ανθρώπινο αναπνευστικό σύστημα από τα τρία διαφορετικά μοντέλα δοσιμετρίας. β) Ρυθμός εναπόθεσης μάζας (%) για (1) ερημικά, (2) μείξεων, (3) καύσης βιομάζας υποθέτωντας υδρόφοβα (dry) ή υγροσκοπικά σωματίδια (κ=0,3) στο ανώτερο (κόκκινες μπάρες) και κατώτερο (μπλε μπάρες) αναπνευστικό σύστημα, αποτέλεσμα των μοντέλων δοσιμετρίας. Τα ποσοστά αναφέρονται στις μέσες τιμές των ρυθμών εναπόθεσης μάζας κάθε κατηγορίας αερολύματος (Πίνακας 7). Όλα τα δεδομένα μετρήθηκαν στο σταθμό DEM, τη χρονική περίοδο 1-18 Αυγούστου 2021. Οι σκιασμένες περιοχές αντιπροσωπεύουν τις χρονικές περιόδους κατά τις οποίες τα PM<sub>10</sub> ξεπέρασαν τις μέσες ετήσιες τιμές τωνς (20 μg m<sup>-3</sup>) (Mylonaki, et al., 2023b).

#### 5.3.9. Σύγκριση των τρίων μοντελών δοσιμετρίας αερολύματων στο ανώρωπινο αναπνεύστικο σύστημα

Οι αποκλίσεις μεταξύ των μοντέλων δοσιμετρίας (a-b-c) υπό διαφορετικές τιμές υγροσκοπικότητας (κ) και αύξησης σωματιδίων (β) (διαφορετικός χρωματισμός), εντός του εύρους ±10%, ±20% και ±50% (έγχρωμες περιοχές) σχετικά με το συνολικό αναπνευστικό σύστημα (1), την εξωθωρακική (2) και θωρακική περιοχή (3) του ανθρώπινου αναπνευστικού συστήματος παρουσιάζονται στην Εικόνα 17.

Σε γενικές γραμμές, η συμφωνία μεταξύ των μοντέλων που μελετήθηκαν μπορεί να θεωρηθεί καλή, ακολουθώντας τα αποτελέσματα των Hofmann et al. (2011). Στην πραγματικότητα, οι αποκλίσεις μεταξύ των μοντέλων MPPD-ExDoM2 και MPPD-RETRAC (Εικόνα 17b και c, αντίστοιχα) σχετικά με το συνολικό αναπνευστικό σύστημα (1) και την εξωθωρακική περιοχή (2) ήταν <10%. Το ίδιο ισχύει και για την περίπτωση RETRAC-ExDoM2 (κ=0, β=0: μπλε γραμμή, Εικόνα 17a) σχετικά με την εναπόθεση στη θωρακική περιοχή (3). Επιπλέον, η συμφωνία μεταξύ των μοντέλων MPPD-ExDoM2 (Εικόνα 17b) και MPPD-RETRAC (Εικόνα 17c) σχετικά με τους ρυθμούς εναπόθεσης στην εξωθωρακική (2) και θωρακική περιοχή (3) ήταν επίσης καλή, με τις αποκλίσεις να υπερβαίνουν μόλις το 20%, το οποίο ισχύει και για τις συγκρίσεις RETRAC-ExDoM2 (κ=0, β=0: μπλε γραμμή, Εικόνα 17a) σχετικά με τους ρυθμούς εναπόθεσης σε ολόκληρο το αναπνευστικό (1), την εξωθωρακική και (2) και θωρακική περιοχή (3).

Επιπροσθέτως, όταν λήφθηκαν υπόψη οι παράμετροι υγροσκοπικότητας και ανάπτυξης σωματιδίων, οι εκτιμήσεις ExDoM2 για την περίπτωση των ρυθμών εναπόθεσης στο αναπνευστικό σύστημα (Εικόνα 17a1) και οι ρυθμοί εναπόθεσης στην εξωθωρακική περιοχή (Εικόνα 17a2) συσχετίσθηκαν καλύτερα (συσχέτιση >90%) με την εκτίμηση του μοντέλου RETRAC (β=0,1) (κόκκινη γραμμή) που παρουσιάζουν ανάπτυξη μικρών σωματιδίων υπό συνθήκες κ=0,3 υγροσκοπικότητας. Ωστόσο, ανεξάρτητα από την τιμή της παραμέτρου β που θεωρείται από το μοντέλο RETRAC, όλες οι αποκλίσεις μεταξύ των προαναφερθέντων συγκρίσεων εμπίπτουν στη γραμμή απόκλισης του 50%.



**Εικόνα 17.** Σύγκριση μεταξύ των (α) RETRAC-ExDoM2, (β) MPPD- ExDoM2 και (γ) MPPD-RETRAC ρυθμών εναπόθεσης (μg h<sup>-1</sup>) (1) σε ολόκληρο το αναπνευστικό σύστημα, (2) στην εξωθωρακική περιοχή και (3) στη θωρακική περιοχή υποθέτοντας ξηρά (κ=0, β=0) ή υγροσκοπικά σωματίδια (κ=0,3) και διαφορετικές τιμές ανάπτυξης σωματιδίων (β). Όλα τα δεδομένα μετρήθηκαν στο σταθμό DEM, τη χρονική περί οδο 1-18 Αυγούστου 2021 (Mylonaki, et al., 2023b).

Τέλος, οι αποκλίσεις μεταξύ των μοντέλων ExDoM2 και RETRAC για τους ρυθμούς εναπόθεσης στη θωρακική περιοχή (Εικόνα 17a3) είναι >50%, δείχνοντας ότι το RETRAC υποτιμά τους ρυθμούς εναπόθεσης μάζας σε σύγκριση με τους αντίστοιχους ExDoM2. Ομοίως, το MPPD παρουσιάζεται να υποτιμά τους ρυθμούς εναπόθεσης στη θωρακική περιοχή σε σύγκριση με τα άλλα δύο μοντέλα εναπόθεσης. Οξειδωτικό δυναμικό αιωρούμενων σωματιδίων καύσης βιομάζας από τις καταστροφικές πυρκαγιές στη Βόρεια Αττική και Εύβοια τον Αύγουστο του 2021.

# 5.3.10. Οδειδωτικό δύναμικό σωματιδίων καύσης βιόμαζας από τις καταστροφικές πυρκαγιές στη βορεία Αττική και Ευβοία τον Αυγούστο του 2021

Εκτός από τη σχέση «συγκέντρωση μάζας-κίνδυνος υγείας» που παρουσιάστηκε προηγουμένως, μια άλλη σημαντική παράμετρος που πρέπει να λαμβάνεται υπόψη κατά την αξιολόγηση των κινδύνων που ενέχουν τα αιωρούμενα σωματίδια για την ανθρώπινη υγεία αποτελεί το οδειδωτικό δυναμικό τους.

Στην Εικόνα 18α παρουσιάζεται το ημερήσιο οξειδωτικό δυναμικό μεταξύ 5 και 18 Αυγούστου 2021, καθώς και η συσχέτιση κατά Pearson (Εικόνα 18b) μεταξύ του 1) ΟC και του οξειδωτικού δυναμικού κατ' όγκο (OP<sup>DTTv</sup>), 2) του EC και του OP<sup>DTTv</sup> και 3) του PM<sub>2.5</sub> και του οδειδωτικού δυναμικού κατά μάζα (OP<sup>DTTm</sup>). Οι σκιασμένες περιοχές στην Εικόνα 18α παρουσιάζουν τις χρονικές περιόδους του Αυγούστου 2021 όταν οι συγκεντρώσεις μάζας PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>, PM<sub>1</sub> και/ή OC και EC (Εικόνα 15α, έγχρωμες γραμμές) υπερέβησαν τις αντίστοιχες ετήσιες ή μηνιαίες μέσες τιμές τους, καθώς και τα όρια ποιότητας αέρα κατά ΠΟΥ και ΕΕ (Εικόνα 15α, διακεκομμένες γραμμές). Ωστόσο, τα δείγματα OP έχουν χρονική ανάλυση 24 ωρών, ενώ οι επιλεγμένες χρονικές περίοδοι (Εικόνες 15a) και οι αντίστοιχοι τύποι αερολύματος (ερημικά, καύσης βιομάζας, μείξεις) αναφέρονται σε λίγες μόνο ώρες μέσα στην ημέρα. Έτσι, εδώ, η παράμετρος OP συσχετίζεται πάντα με μείξεις των προαναφερθέντων αερολυμάτων με ανθρωπογενή αερολύματα.



**Εικόνα 18.** a) Οξειδωτικό δυναμικό κατά μάζα και όγκο (OP<sup>DTTm</sup> and OP<sup>DTTv</sup>). β) Συσχέτιση Pearson μεταξύ συγκέντρωσης μάζας 1) OC και OP<sup>DTTv</sup>, 2) EC και OP<sup>DTTv</sup> και 3) PM<sub>2.5</sub> και OP<sup>DTTm</sup>. Όλα τα δεδομένα μετρήθηκαν στο σταθμό DEM, τη χρονική περίοδο 1-18 Αυγούστου 2021. Οι σκιασμένες περιοχές αντιπροσωπεύουν τις χρονικές περιόδους κατά τις οποίες τα PM ξεπέρασαν τις μέσες ετήσιες ή μηνιαίες τιμές τους (Mylonaki, et al., 2023a).

Υψηλότερες τιμές OP<sup>DTTv</sup> (>0,2 nmol min<sup>-1</sup> m<sup>-3</sup>) παρατηρήθηκαν στις 7 και 18 Αυγούστου (Εικόνα 18a) ημέρες που χαρακτηρίσθηκαν από υψηλές συγκεντρώσεις καύσης βιομάζας, σε σύγκριση με αυτές που παρατηρήθηκαν στις 5 Αυγούστου (Εικόνα 18a; 0,08±0,03 nmol min<sup>-1</sup> m<sup>-3</sup>), που χαρακτηρίστηκε από μείξεις ερημικών αερολυμάτων, καθώς και με εκείνα της κατηγορίας ηπειρωτικών αερολυμάτων (Εικόνα 18a μη σκιασμένες περιοχές; <0,07 nmol min<sup>-1</sup> m<sup>-3</sup>), αποκαλύπτοντας μια συσχέτιση μεταξύ των μεγαλύτερων συγκεντρώσεων μάζας καπνού OC και EC και της παραμέτρου OP<sup>DTTv</sup>. Πράγματι, οι συγκεντρώσεις μάζας OC και EC συσχετίζονται θετικά με την παράμετρο OP<sup>DTTv</sup> (συντελεστής συσχέτισης Pearson: R=0.86 και R=0.73 αντίστοιχα; Εικόνα 18b1 και 2, αντίστοιχα).

Aντίθετα, η χαμηλότερη τιμή  $OP^{DTTm}$  παρατηρήθηκε στις 5 Αυγούστου (Εικόνα 18a, ~14 pmol min<sup>-1</sup> µg<sup>-1</sup>) για τις μείξεις ερημικών αερολυμάτων με αερολύματα καύσης βιομάζας, ενώ υψηλότερες τιμές παρατηρούνται για τα ανθρωπογενή αερολύματα (Εικόνα 18a μη σκιασμένες περιοχές, >40 pmol min<sup>-1</sup> µg<sup>-1</sup>). Έτσι, η αρνητική συσχέτιση της παραμέτρου  $OP^{DTTm}$  με τη συγκέντρωση μάζας  $PM_{2,5}$  (συντελεστής Pearson R=-0.68) αποκαλύπτει ότι ακόμη και σε μικρή συγκέντρωση, τα αερολύματα υποβάθρου μπορεί να είναι ιδιαιτέρως τοξικά (Εικόνα 18a μη σκιασμένες περιοχές).

Έως τώρα, οι μελέτες που μελετούν την παράμετρο  $OP^{DTTm}$  των οργανικών αερολυμάτων (OA) (Verma, et al., 2009; Saffari, et al., 2016; Chirizzi, et al., 2017; Wong, et al., 2019) έχουν αποδώσει τις υψηλότερες τιμές της σε δευτερεύουσες διεργασίες, υποστηρίζοντας το ρόλο της φωτοχημείας στη δημιουργία οξειδοαναγωγικών ενεργών οργανικών ενώσεων. Επιπλέον, ο εκτεθειμένος σε όζον BC εμφανίζει υψηλότερο  $OP^{DTTm}$  από το μη επεξεργασμένο BC, πιθανότατα λόγω του σχηματισμού κινονών από την οξείδωση των PAH που συνδέεται με τη δημιουργία αιθάλης από το όζον (Antiñolo, et al., 2015; Pant, et al., 2015). Έτσι, η υψηλή τιμή  $OP^{DTTm}$  των αερολυμάτων καπνού σε αυτή τη μελέτη (31.75±2.20 pmol min<sup>-1</sup> μg<sup>-1</sup>) επηρεάζεται μάλλον από την ατμοσφαιρική γήρανση και την ανάμειξη των αερολυμάτων με αερολύματα υποβάθρου παρά από τη συγκέντρωση μάζας τους. Ωστόσο, αυτή η τιμή είναι εντός του αποδεκτού εύρους (20-40 pmol min<sup>-1</sup> μg<sup>-1</sup>) που υποδεικνύεται από τη βιβλιογραφία για τον καπνό 5-68 ωρών (μέσης ηλικίας; Wong, et al., 2019), τον καπνό από δασική πυρκαγιά (Verma , et al., 2009) και γενικά μικρών σε μέγεθος αερολυμάτων (Bates, et al., 2019).



Εικόνα 19. Οξειδωτικό δυναμικό κατά μάζα (OP<sup>DTTm</sup>) που αναφέρεται στη βιβλιογραφία και σε αυτή τη μελέτη για διάφορους τύπους αερολυμάτων (Mylonaki, et al., 2022b).

Από την άλλη πλευρά, μία από τις λίγες, από όσο γνωρίζουμε, μελέτες που αφορούν το OP των ερημικών αερολυμάτων από την Αφρική, όπως αυτή των Chirizzi et al. (2017), στην οποία συγκρίθηκαν οι τιμές  $OP^{DTTv}$ και  $OP^{DTTm}$  των ερημικών αερολυμάτων με εκείνες των OA και κατέληξε στο συμπέρασμα ότι πρώτα αναπτύσσουν μικρότερες τιμές  $OP^{DTTv}$  και  $OP^{DTTm}$  από τα δεύτερα (Εικόνα 19), δικαιολογώντας τις μικρές τιμές  $OP^{DTTv}$  και  $OP^{DTTm}$  της 5η Αυγούστου 2021 (0.08±0.03 nmol min<sup>-1</sup> m<sup>-3</sup> και 13.88±2.31 pmol min<sup>-1</sup> μg<sup>-1</sup>, αντίστοιχα), σε σύγκριση με αυτές των 7 και 18 Αυγούστου (0.22±0.02 nmol min<sup>-1</sup> m<sup>-3</sup> και 31.75±2.20 pmol min<sup>-1</sup> μg<sup>-1</sup>, αντίστοιχα).

# 5.3.11. Ρυθμός δόσης οξειδωτικού δύναμικου αιωρούμενων σωματιδίων καύσης βιομάζας από τις καταστροφικές πυρκαγιές στη Βορεία Αττική και Ευβοία τον Αυγούστο του 2021

Τελευταίο αλλά εξίσου σημαντικό, παρουσιάζονται οι ρυθμοί δόσης ΟΡ σε ολόκληρο το αναπνευστικό σύστημα (Εικόνα 20a) και στις υποπεριοχές του (Εικόνα 20b), όταν οι ρυθμοί εναπόθεσης μάζας PM πολλαπλασιάζονται με την παράμετρο OP<sup>DTTm</sup> υπό διάφορες συνθήκες κ και β. Τα δείγματα OP έχουν χρονική ανάλυση 24 ωρών, επομένως οι ρυθμοί εναπόθεσης OP παρέχονται με την ίδια χρονική ανάλυση. Οι σκιασμένες περιοχές στην Εικόνα 20a παρουσιάζουν τις χρονικές περιόδους του Αυγούστου 2021 όταν οι συγκεντρώσεις μάζας PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub>, PM<sub>1</sub> και/ή OC και EC (Εικόνα 15a, έγχρωμες γραμμές) υπερέβησαν τις αντίστοιχες ετήσιες ή μηνιαίες μέσες τιμές, καθώς και τα όρια ποιότητας αέρα κατά ΠΟΥ και ΕΕ (Εικόνα 15a, διακεκομμένες γραμμές). Τα ποσοστά αναφέρονται στις μέσες τιμές των συνολικών ρυθμών εναπόθεσης μάζας κάθε κατηγορίας αερολύματος (Πίνακας 7).



Εικόνα 20. a) Ρυθμός εναπόθεσης OP (μg h<sup>-1</sup>), για υδρόφοβα (έγχρωμες συμπαγείς γραμμές) και υγροσκοπικά σωματίδια (έγχρωμες διακεκομμένες γραμμές) από τα τρία διαφορετικά μοντέλα δοσιμετρίας που χρησιμοποιήθηκαν σε αυτή τη μελέτη. β) Ρυθμός εναπόθεσης (%) για (1) μείξεις ερημικών αερολυμάτων με καύσης βιομάζας, (2) αερολύματα καύσης βιομάζας και (3) αερολύματα υποβάθρου υποθέτοντας υδρόφοβα (dry) ή υγροσκοπικά σωματίδια (κ=0,3), από τα τρία διαφορετικά μοντέλα δοσιμετρίας που χρησιμοποιήθηκαν σε αυτή τη μελέτη. Γα ποσοστά αναφέρονται στις μέσες τιμές των συνολικών ρυθμών εναπόθεσης μάζας κάθε κατηγορίας αερολύματος (Πίνακας 7). Όλα τα δεδομένα μετρήθηκαν στο σταθμό DEM, τη χρονική περίοδο 1-18 Αυγούστου 2021. Οι σκιασμένες περιοχές αντιπροσωπεύουν τις χρονικές περιόδους κατά τις οποίες τα PM ξεπέρασαν τις μέσες ετήσιες ή μηνιαίες τιμές τως (Εικόνα 15a) (Mylonaki, et al., 2023b).

Σύμφωνα με την Εικόνα 20a, η αύξηση των ρυθμών εναπόθεσης OP στο ανθρώπινο αναπνευστικό σύστημα είναι ανάλογη με την αύξηση τόσο των ρυθμών εναπόθεσης μάζας PM όσο και των τιμών OP<sup>DTTm</sup>. Συγκεκριμένα, μολονότι οι τιμές OP<sup>DTTm</sup> των μείξεων ερημικών αερολυμάτων με καύσης βιομάζας και των αερολυμάτων καύσης βιομάζας είναι μικρότερες (<32 pmol min<sup>-1</sup> h<sup>-1</sup>; Εικόνα 16a σκιασμένες περιοχές) σε σύγκριση με αυτές του υπόβαθρου (>43 pmol min<sup>-1</sup> h<sup>-1</sup>; Εικόνα 16a μη σκιασμένες περιοχές), οι ρυθμοί εναπόθεσης OP αυτών των μειγμάτων αερολυμάτων είναι υψηλότεροι (>400 pmol min<sup>-1</sup> h<sup>-1</sup>; Εικόνα 20a σκιασμένες περιοχές) σε σύγκριση με τους ρυθμούς απόθεσης υποβάθρου (<350 pmol min<sup>-1</sup> h<sup>-1</sup>; Εικόνα 20a μη σκιασμένες περιοχές), λόγω της αύξησης των συνολικών ρυθμών εναπόθεσης μάζας PM κατά τις αντίστοιχες χρονικές περιόδους (Εικόνα 15a). Έτσι, η Εικόνα 20a παρουσιάζει ουσιαστικά την κατηγορία αερολυμάτων που αποτελεί τον κύριο κίνδυνο για το ανθρώπινο αναπνευστικό σύστημα. Στην περίπτωσή μας αυτή είναι η μείξεις

ερημικών αερολυμάτων με αερολύματα καύσης βιομάζας, με την κατηγορία των αερολυμάτων καύσης βιομάζας να ακολουθεί.

Ταυτόχρονα, τα ποσοστά εναπόθεσης OP στη θωρακική περιοχή για την κατηγορία αερολυμάτων καύσης βιομάζας είναι υψηλότερα (Εικόνα 20b2, >20%) από εκείνα των ερημικών αναμεμειγμένων με καπνό (Εικόνα 20b1, <20%) και των αερολυμάτων υποβάθρου (Εικόνα 20b3, <20%). Έτσι, οι εκπομπές καύσης βιομάζας, εάν βρεθούν σε υψηλές συγκεντρώσεις, διεισδύουν βαθύτερα στο ανθρώπινο αναπνευστικό σύστημα από τα αερολύματα υποβάθρου και τα ερημικά αερολύματα και είναι σχεδόν εξίσου τοξικά με τα αερολύματα ερημικής προέλευσης όταν αυτά βρεθούν σε υψηλές συγκεντρώσεις.

#### 5.4. ΣΥΝΟΨΗ

Στην παρούσα Διδακτορική Διατριβή, αρχικά, συγκρίθηκαν τρεις ανεξάρτητες μέθοδοι κατηγοριοποίησης αερολυμάτων: NATALI, MD και SCAN γαρακτηρίζοντας 97 στρωματώσεις αερολυμάτων ελεύθερης τροπόσφαιρας που παρατηρήθηκαν σε τέσσερεις σταθμούς του δικτύου EARLINET (Bucharest, Kuopio, Leipzig και Potenza) με συστήματα Raman lidar πολλαπλών μηκών κύματος κατά τη χρονική περίοδο 2015-2018, παρέχοντας τα πλεονεκτήματα και τους περιορισμούς τους. Οι διαφορές στη σύγκρισης των αποτελεσμάτων των μεθόδων κατηγοριοποίησης MD και NATALI, MD και SCAN και SCAN και NATALI βρέθηκαν να είναι 62%, 44% και 40%, αντίστοιχα. Ταυτόχρονα, βρέθηκε ότι ο σταθμός Bucharest επηρεάζεται κατά 29% από ηπειρωτικά ρυπασμένα αερολύματα, κατά 14% από αερολύματα καύσης βιομάζας και κατά 57% από μείξεις των παραπάνω ειδών αερολυμάτων. Αντίστοιγα, ο σταθμός Κυορίο βρέθηκε να επηρεάζεται κατά 33% από ηπειρωτικά καθαρά αερολύματα ενώ το υπόλοιπο ποσοστό των στρωματώσεων αερολυμάτων που παρατηρούνται στο συγκεκριμένο σταθμό αποτελείται από μείξεις ηπειρωτικών καθαρών αερολυμάτων είτε με θαλάσσια είτε με ηπειρωτικά ρυπασμένα αερολύματα (67%). Από την άλλη, ο σταθμός της Potenza, βρέθηκε να επηρεάζεται κυρίως από μείξεις ηπειρωτικών ρυπασμένων με ερημικά (22%), θαλάσσια (16%), και αερολύματα καύσης βιομάζας (38%) ενώ κατά 24% φάνηκε να επηρεάζεται από ηπειρωτικά ρυπασμένα αερολύματα. Τέλος, ο σταθμός Leipzig βρέθηκε να επηρεάζεται κυρίως από ηπειρωτικά ρυπασμένα αερολύματα (78%), με ένα μικρό ποσοστό στρωματώσεων να αποτελούνται από μείξεις ηπειρωτικών αερολυμάτων με θαλάσσια ή ηπειρωτικά καθαρά αερολύματα (22%).

Επιπροσθέτως, χαρακτηρίσθηκαν περισσότερες από 600 στρωματώσεις αερολυμάτων ελεύθερης τροπόσφαιρας που παρατηρήθηκαν στον περιαστιακό σταθμό του Εθνικού και Μετσόβιου Πολυτεχνείου από το σύστημα lidar πολλαπλών μηκών κύματος EOLE κατά τη διάρκεια ημερήσιων και νυχτερινών μετρήσεων. Αυτός ο χαρακτηρισμός οδήγησε, αρχικά, στην ανάκτηση των οπτικών (λόγος lidar, εκθέτης Ångström) και μικροφυσικών ιδιοτήτων (ενεργή ακτίνα, συκέντρωση, δείκτης διάθλασης, συντελεστής μεμονωμένης σκέδασης) των στρωματώσεων αερολυμάτων καπνού (9%) και μείξεων αυτών, είτε με ηπειρωτικά ρυπασμένα (16%), είτε με ερημικά (28%), που παρατηρήθηκαν πάνω από την Αθήνα σε μια περίοδο 9 ετών (2011-2019). Παράλληλα, η ίδια κατηγοριοποίηση είχε ως αποτέλεσμα την ανάκτηση των οπτικών ιδιοτήτων (λόγος lidar, εκθέτης Ångström) στρωματώσεων αερολυμάτων που αναφέρονται σε άλλα είδη [ηπειρωτικά ρυπασμένα (16%), ηπειρωτικά ρυπασμένα και μείξεων αυτών με θαλάσσια αερολύματα (9%), ερημικά αερολύματα ή μείξεις ερημικών με άλλα είδη αερολυμάτων εκτός αερολυμάτων καύσης βιομάζας (22%)] και οι οποίες παρατηρήθηκαν στον περιαστικά σταθμό της Αθήνας κατά τη χρονικής περίοδο 2014-2019.

Στο πλαίσιο του ερευνητικού έργου ΠΑΝΑΚΕΙΑ, χαρακτηρίσθηκαν ακόμη 42 τροποσφαιρικές στρωματώσεις αερολυμάτων που παρατηρήθηκαν στην πόλη του Βόλου από το κινητό σύστημα lidar αποπόλωσης AIAS κατά τη διάρκεια της πειραματικής εκστρατείας ΠΑΝΑΚΕΙΑ τον Ιούλιο του 2019, παρέχοντας για μια ακόμη φορά τις τυπικές τιμές των οπτικών ιδιοτήτων (συντελεστής αποπόλωσης, συντελεστής οπισθοσκέδασης) διάφορων τύπων αερολυμάτων [ηπειρωτικά ρυπασμένα (40%), μείξεις ηπειρωτικών ρυπασμένων με θαλάσσια αερολύματα (21%), αερολύματα καύσης βιομάζας (26%), μείξεις ερημικών αερολυμάτων (12%)]. Με αυτόν τον τρόπο, δημιουργήθηκε μια ισχυρή βάση δεδομένων των μέσων οπτικών και μικροφυσικών ιδιοτήτων των πιο αντιπροσωπευτικών τύπων αερολυμάτων που παρατηρήθηκαν στην Ευρώπη, συμπεριλαμβανομένης της περιοχής της ανατολικής Μεσογείου (Table 21, Appendix).

Παράλληλα, μελετήθηκαν οι επιπτώσεις των αερολυμάτων στο ατμοσφαιρικό ισοζύγιο ακτινοβολίας στην περιοχή της Αθήνας, χρησιμοποιώντας ένα μοντέλο πρόβλεψης ακτινοβολίας (Libradtran). Με τη χρήση του ίδιου μοντέλο, μελετήθηκαν και οι επιπτώσεις μιας συμπαγούς στρωμάτωσης αερολυμάτων καύσης βιομάζας που παρατηρήθηκε περίπου 120 χιλιόμετρα βόρεια της Αθήνας από το δορυφόρο CALIPSO κατά τη διάρκεια

των καταστροφικών πυρκαγιών που σημειώθηκαν στην βόρεια Αττική και βόρεια Εύβοια τον Αύγουστο του 2021. Οι επιπτώσεις των αερολυμάτων στο ατμοσφαιρικό ισοζύγιο ακτινοβολίας κυμάνθηκαν από -16 έως -72 Wm<sup>-2</sup> στο έδαφος και από -7 έως -40 στην κορυφή της ατμόσφαιρας, ανάλογα με την τιμή του οπτικού πάχους των στρωματώσεων αερολυμάτων καθώς και την ώρα κατά την οποία παρατηρούνται. Ωστόσο, φαίνεται ότι οι εκπομπές από κοντινές δασικές πυρκαγιές μεγάλης έντασης μπορούν να ενισχύσουν αυτές τις επιπτώσεις στην επιφάνεια ακόμα και κατά 400%.

Συνοψίζοντας, η εκπομπή και η μεταφορά ατμοσφαιρικών αερολυμάτων που συνοδεύονται από διαδικασίες ατμοσφαιρικής γήρανσης και ανάμειξης στην περιοχή της Μεσογείου, καθιστά την περιοχή ιδανική για τη μελέτη των επιπτώσεων των κύριων τύπων αερολυμάτων και των μείξεων αυτών στο ατμοσφαιρικό ισοζύγιο ακτινοβολίας. Η συστηματική μελέτη των κατακόρυφων κατανομών των οπτικών ιδιοτήτων αερολυμάτων που παρέχονται μέσω της τεχνικής lidar και η ανάκτηση των μικροφυσικών και χημικών ιδιοτήτων τους αποτελούν βασικούς τομείς έρευνας που επιτρέπουν την εκτίμηση των επιδράσεων ακτινοβολίας από διαφορετικούς τύπους αερολύματος σε περιφερειακή κλίμακα. Συνίσταται, λοιπόν, η περαιτέρω διερεύνηση των μείξεων αερολυμάτων χρησιμοποιώντας πρόσθετες ιδιότητες, όπως είναι οι μικροφυσικές και οι χημικές τους ιδιότητες, έτσι ώστε οι προβλέψεις των μοντέλων πρόβλεψης ακτινοβολίας να βασίζονται σε πραγματικές κατακόρυφες κατανομές ιδιοτήτων αερολυμάτων και όχι σε εκτιμήσεις.

Στο δεύτερο μέρος αυτής της Διατριβής, επιτόπιες μετρήσεις ερημικών αερολυμάτων μεταφερόμενα από την Αφρική και καύσης βιομάζας από τις δασικές πυρκαγιές τον Αύγουστο του 2021 στην Αττική και Εύβοια χρησιμοποιήθηκαν σαν δεδομένα εισόδου σε τρία μοντέλα εναπόθεσης αερολυμάτων (MPPD, RETRAC, ExDoM2). Μελετήθηκαν διαφορετικές χρονικές περίοδοι από 1 έως 18 Αυγούστου 2021 κατά τις οποίες οι συγκεντρώσεις των PM<sub>10</sub> ξεπέρασαν το Ευρωπαϊκό όριο ποιότητας αέρα (40 μg m<sup>-3</sup>), ενώ χαρακτηρίσθηκαν από διαφορετικό είδος αερολυμάτων (ερημικά, καύσης βιομάζας, μείξεων των παραπάνω). Υπολογίσθηκαν οι ρυθμοί εναπόθεσης των PM και OC στο ανθρώπινο αναπνευστικό και στα μέρη του (ανώτερο και κατώτερο αναπνευστικό) κατά τις διαφορετικές χρονικές περιόδους Βρέθηκε ότι οι ρυθμοί εναπόθεσης των PM<sub>10</sub> και OC επηρεάστηκαν σε μεγάλο βαθμό από τις αυξημένες συγκεντρώσεις τους. Ταυτόχρονα, παρουσιάστηκε η συσχέτιση της εναπόθεσης των αερολυμάτων στα επιμέρους συστήματα του αναπνευστικού από το μέγεθός τους, με τα σωματίδια καπνού να εναποτίθενται βαθύτερα σε αυτό, σε σύγκριση με τα ερημικά ή τις μείξεις αυτών. Οι αποκλίσεις μεταξύ των μοντέλων που μελετήθηκαν ήταν <10% για τους ρυθμούς εναπόθεσης σε ολόκληρο το αναπνευστικό σύστημα και <20% για τα επημέρους τμήματά του, εκτός από τους ρυθμούς εναπόθεσης αερολυμάτων στην περιοχή του κατώτερου αναπνευστικού που αφορά τη σύγκριση μεταξύ των μοντέλων ExDoM2-RETRAC όταν ελήφθηκε υπόψη η υγροσκοπικότητα.

Επιπροσθέτως, ανακτήθηκαν οι παράμετροι  $OP^{DTTv}$  και  $OP^{DTTm}$  χρησιμοποιώντας τη μέθοδο DTT αναδεικνύοντας την εξάρτηση του  $OP^{DTTv}$  από τον τύπο αερολυμάτων. Συγκεκριμένα, οι συγκεντρώσεις μάζας OC και EC από τις εκπομπές δασικών πυρκαγιών συσχετίσθηκαν θετικά (συντελεστής συσχέτισης Pearson R=0,86 και 0,73, αντίστοιχα) με την παράμετρο  $OP^{DTTv}$ . Ταυτόχρονα, παρουσιάσθηκε η εξάρτηση του  $OP^{DTTm}$  από τις δευτερεύουσες διεργασίες και τη φωτοχημεία, αποκαλύπτοντας την τοξικότητα των αερολυμάτων που σχετίζονται με την ανθρωπογενή δραστηριότητα. Τέλος, αναφέρθηκαν οι ρυθμοί δόσης εναπόθεσης OP στο ανθρώπινο αναπνευστικό σύστημα διάφορων ειδών αερολυμάτων και μείξεων. Η μελέτη μας τόνισε ότι οι εκπομπές καπνού από τις δασικές πυρκαγιές του Αυγούστου 2021 αποδείχθηκαν εξίσου επιβλαβείς για το ανθρώπινο αναπνευστικό σύστημα από εκείνες της ερημικής σκόνης που μεταφέρθηκαν στην Αθήνα νωρίτερα τον ίδιο μήνα και διείσδυσαν βαθύτερα στο ανθρώπινο αναπνευστικό σύστημα ακόμα και από τα αερολύματα υποβάθρου.

Δεδομένου ότι τα αποτελέσματά μας τόνισαν τις διαφορές στην εναπόθεση διαφορετικών ειδών αερολυμάτων στο ανθρώπινο αναπνευστικό σύστημα, μια περαιτέρω συνέχιση της παρούσας μελέτης θα μπορούσε να επικεντρωθεί στη συλλογή και το χαρακτηρισμό διαφορετικών τύπων αερολυμάτων (ερημικά, καύσης βιομάζας, ηπειρωτικά, κ.λπ.) με μεγαλύτερη χρονική ανάλυση (λιγότερη από 1 ώρα). Αυτό είναι ιδιαίτερα σημαντικό σε περιοχές που χαρακτηρίζονται από μεγάλες συγκεντρώσεις ερημικής σκόνης, καύσης βιομάζας και άλλων ειδών αερολυμάτων (ηπειρωτικά, θαλάσσια, βιοαερολύματα). Ταυτόχρονα, οι χημικές και υγροσκοπικές ιδιότητες τους θα πρέπει να μελετηθούν περαιτέρω και να ληφθούν υπόψη στην αξιολόγηση των επιπτώσεων που ενέχει η εισπνοή των αερολυμάτων στην ανθρώπινη υγεία.

# APPENDIX

Year [yyyy]	Date INO [dd/mm]	KUO	LEI	РОТ	No o layers	f SUM (dates)	SUM (layers)
2015	22/01	*			1	10	21
	13/04			*	2		
	07/05			*	2		
	04/06			*	3		
	11/06			*	4		
	16/07			*	1		
	20/07			*	1		
	30/07	*		*	1+4		
	24/08	*			1		
	03/09			*	1		
2016	04/01	*			1	14	21
	07/01	*			2		
	21/03	*			1		
	28/03	*			1		
	04/04			*	1		
	11/04			*	1		
	14/04	*			1		
	23/06			*	2		
	27/06			*	2		
	04/07			*	3		
	07/07			*	1		
	11/07			*	2		
	25/08			*	2		
	29/08			*	1		
2017	23/03			*	1	17	38
	30/03			*	2		
	27/04			*	1		

 Table 12. Experimental sites and experimental data used for the comparison of the three independent aerosol typing techniques.

Year [yyyy]	Date [dd/mm]	INO	KUO	LEI	РОТ	No of layers	SUM (dates)	SUM (layers)
	22/05				*	1		
	08/06				*	2		
	12/06				*	1		
	15/06				*	4		
	22/06				*	4		
	13/07				*	1		
	19/07				*	2		
	20/07				*	4		
	24/08	*				3		
	28/08				*	5		
	31/08	*			*	2+2		
	07/09	*				1		
	21/09	*				1		
	19/10				*	1		
2018	21/06			*		1	7	17
	19/07			*		3		
	26/07			*		2		
	30/07			*		3		
	02/08			*		2		
	16/08			*		1		
	27/08			*		5		
SUM (dates)		4	8	7	31		Sum of laye the years: 9	rs throughout 7
SUM (layers)		7	9	17	64			

**Table 13.** Geometrical properties of the aerosol layers observed over the four European Aerosol Research Lidar Network (EARLINET) stations and their corresponding HYSPLIT arriving height and time used for the comparison of different typing techniques.

Year [yyyy]	Date [dd/mm-hh:mm UTC]	Bottom [m]	Top [m]	HYSPLIT arriving height [m]
2015	22/01-18:05	3744	4402	4000
	13/04-19:45	1330	1570	1500

Year [yyyy]	Date [dd/mm-hh:mm UTC]	Bottom [m]	Top [m]	HYSPLIT arriving height [m]
		2410	2650	2500
	07/05-20:45	2890	3190	3000
		3910	4570	4000
	04/06-19:17	1570	1810	1500
		2710	3130	3000
		3910	4590	4000
	11/06-23:35	1270	1570	1500
		1690	1990	2000
		2350	2710	2500
		3370	3730	4000
	16/07-21:00	1810	3130	2500
	20/07-23:59	1510	3250	3000
	30/07-19:25	1324	2041	1500
	21:26	2830	3130	3000
		3490	3790	4000
		4570	4930	5000
		5710	6010	5000
	24/08-18:00	1204	1802	1500
	03/09-20:16	1930	2710	2500
2016	04/01-15:18	2399	3296	3000
	07/01-15:19	965	1145	1500
		1982	2191	2000
	21/03-18:21	1115	1294	1500
	28/03-23:11	4701	4970	5000
	04/04-18:47	2290	3310	3000
	11/04-20:27	2050	2530	2500
	14/04-21:00	1742	1922	2000
	23/06-19:30	1930	3430	3000
		4150	5110	5000

Year [yyyy]	Date [dd/mm-hh:mm UTC]	Bottom [m]	Top [m]	HYSPLIT arriving height [m]
	27/06-21:07	1570	1870	1500
		2530	2890	2500
	04/07-19:56	1750	1930	2000
		2470	2710	2500
		2950	3310	3000
	07/07-19:01	1210	1510	1500
	11/07-19:22	1090	2830	2000
		3010	4630	4000
	25/08-18:29	1030	1870	1500
		2350	3850	3000
	29/08-19:16	1930	2590	2500
2017	23/03-18:10	1990	2170	2000
	30/03-18:08	1270	1450	1500
		1990	2350	2000
	27/04-19:48	3250	4210	4000
	22/05-19:01	1090	2170	1500
	08/06-19:14	1390	1750	1500
		2290	2650	2500
	12/06-19:29	1630	1990	2000
	15/06-20:00	1090	1930	1500
		2350	2650	2500
		2830	3250	3000
		3850	4270	4000
	22/06-19:18	1030	1570	1500
		2110	2590	2500
		3130	3970	4000
		4150	5230	5000
	13/07-20:15	1810	3130	2500
	19/07-18:57	1030	1450	1500

Year [yyyy]	Date [dd/mm-hh:mm UTC]	Bottom [m]	Top [m]	HYSPLIT arriving height [m]
		1990	2530	2500
	20/07-20:15	1030	1450	1500
		1870	2830	2500
		3490	4510	4000
		4990	6010	5000
	24/08-16:56	1068	1368	1500
		1968	2418	2000
	17:59	1668	2268	2000
	28/08-18:45	1750	1990	2000
		3250	3430	3000
		4330	4570	4000
		4810	5050	5000
		5710	5890	5000
	31/08-17:59	1218	1668	1500
		2118	2418	2500
	18:26	1510	1750	1500
		2470	2950	2500
	07/09-16:33	1968	2268	2000
	21/09-16:16	1968	2268	2000
	19/10-17:14	1930	2110	2000
2018	21/06-20:30	1807	2375	2000
	19/07-21:30	1710	2330	2000
		2988	3571	3000
		4011	4512	4000
	26/07-20:00	1112	1352	1500
		1434	2398	2000
	30/07-21:45	1112	1516	1500
		1904	2667	2500
		3070	3339	3000

Year [yyyy]	Date [dd/mm-hh:mm UTC]	Bottom [m]	Top [m]	HYSPLIT arriving height [m]
	02/08-23:00	1120	2181	1500
		2681	3212	3000
	16/08-21:20	1613	2442	2000
	27/08-19:00	1112	1673	1500
		1934	2592	2500
		3107	4310	4000
		4557	5341	5000
		6111	6313	5000

 Table 14. Geometrical properties of aerosol layers observed over Athens, Greece by the EOLE lidar system, within the time period 2011-2019.

Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2011	4	12	19	800	1500
2011	4	12	20	3500	4500
2011	4	14	19	500	1500
2011	4	14	20	2000	2500
2011	4	14	21	3000	3100
2011	4	14	22	2000	2500
2011	4	14	23	3000	3100
2011	5	9	19	500	2000
2011	5	13	21	1500	2500
2011	5	16	21	2000	2200
2011	5	16	22	3000	3500
2011	5	20	20	2000	3000
2011	5	20	21	6500	7000
2011	5	23	20	3000	4000
2011	5	24	20	2000	4500
2011	5	30	23	500	1500
2011	6	9	19	2000	2500
2011	6	9	20	2000	2500
2011	6	27	20	1500	3000

Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2011	6	30	20	500	2000
2011	7	7	20	500	2500
2011	7	12	0	500	1500
2011	7	14	20	5500	6000
2011	7	16	1	1500	2000
2011	7	18	20	500	1500
2011	7	18	21	2000	2500
2011	7	20	19	500	2500
2011	7	20	20	3000	4000
2011	7	25	21	1000	1500
2011	7	28	19	1500	2000
2011	7	28	20	3500	4000
2011	7	28	21	3500	4000
2011	8	4	20	3000	3500
2011	9	2	20	2500	3500
2011	9	4	20	1500	2000
2011	9	4	21	2500	2700
2011	9	8	23	500	1000
2011	9	8	24	1500	2500
2011	9	9	18	500	1500
2011	9	9	19	1800	2000
2011	9	12	19	2000	2500
2011	9	13	19	2000	2500
2011	9	15	19	1000	2000
2011	9	15	22	2000	2500
2011	9	17	21	2000	3000
2012	3	15	18	500	2500
2012	3	22	17	1500	2000
2012	3	22	18	1500	2000
2012	3	26	18	500	2000

Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2012	3	26	19	2500	3000
2012	4	5	17	2500	3500
2012	4	6	18	500	2000
2012	4	7	19	500	2000
2012	5	28	20	500	1500
2012	5	28	20	2500	3000
2012	6	11	19	1000	2000
2012	6	12	20	1500	2000
2012	6	13	19	1000	2000
2012	6	13	20	2500	3500
2012	7	5	19	1000	2000
2012	7	5	20	2500	3000
2012	7	9	23	1000	2000
2012	7	9	24	1500	3000
2012	7	10	21	500	1000
2012	7	10	22	1000	3000
2012	7	11	21	2000	4000
2012	7	16	20	1500	3000
2012	7	25	19	1000	2000
2012	7	26	19	1000	3000
2012	9	19	18	1000	1500
2012	9	19	19	2000	3500
2012	9	20	18	1000	3500
2012	9	21	17	1500	2000
2012	9	22	18	1000	1500
2012	9	23	18	1500	2000
2012	9	24	19	1000	1500
2012	9	24	20	2000	2500
2012	9	25	18	1000	4000
2012	9	26	16	1000	3000

2012       9       27         2012       9       29         2012       10       25         2012       10       25         2012       10       25         2012       11       8         2012       11       20         2012       11       20         2012       12       6         2013       2       4         2013       3       4	ay I	Iour	Base [m]	Top [m]
2012       9       29         2012       10       29         2012       10       29         2012       11       8         2012       11       20         2012       11       20         2012       12       6         2013       2       4         2013       3       4	7 1	9	1000	2000
2012       10       25         2012       10       25         2012       11       8         2012       11       26         2012       11       26         2012       12       6         2012       12       6         2013       2       4         2013       3       4	9 1	8	1500	2000
2012       10       29         2012       11       8         2012       11       20         2012       12       6         2012       12       6         2013       2       4         2013       3       4	5 1	7	2000	2500
2012       11       8         2012       11       20         2012       12       6         2012       12       6         2013       2       4         2013       3       4	9 1	7	1500	2500
2012       11       20         2012       12       6         2012       12       6         2013       2       4         2013       3       4	1	8	1000	1500
2012       12       6         2012       12       6         2013       2       4         2013       3       4	6 1	9	1000	1500
2012       12       6         2013       2       4         2013       3       4	1	9	500	1500
2013     2     4       2013     3     4	2	20	500	1500
2013 3 4	1	7	1500	2000
	1	8	500	1000
2013 4 1	2	20	500	1500
2013 4 1	2	21	2800	3000
2013 5 20	0 2	20	1500	2000
2013 6 3	2	20	500	1500
2013 6 3	2	21	2000	3000
2013 6 17	7 2	20	1500	2500
2013 7 1	2	21	2000	2500
2013 7 1	2	22	9500	11000
2013 7 8	2	20	500	2000
2013 7 15	5 2	20	2000	3000
2013 7 25	5 1	9	500	1000
2013 7 25	5 2	20	2000	2500
2013 12 30	0 1	7	500	2000
2013 12 30	0 1	8	2900	3000
2014 1 16	6 1	9	500	1000
2014 1 16	6 2	20	1500	1600
2014 1 21	1 1	3	500	2000
2014 1 21	1 1	4	500	2000
2014 1 23	3 1	8	500	1000
2014 1 23				

Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2014	1	23	20	1800	2000
2014	1	29	13	500	1000
2014	1	29	14	1500	2200
2014	1	29	15	500	1000
2014	1	29	17	500	1000
2014	1	29	19	500	1000
2014	1	29	18	1000	2000
2014	1	29	20	1000	2000
2014	2	10	10	500	1000
2014	2	10	12	500	1000
2014	2	10	11	3000	3500
2014	2	10	13	3000	3500
2014	2	10	18	500	1000
2014	2	10	21	500	1000
2014	2	10	19	2000	2100
2014	2	10	22	2000	2100
2014	2	10	20	3000	4000
2014	2	10	23	3000	4000
2014	2	13	19	500	1500
2014	2	13	21	500	1500
2014	2	13	20	1800	2000
2014	2	13	22	1800	2000
2014	2	17	12	2000	3000
2014	2	17	13	3800	4000
2014	2	17	19	3000	3500
2014	3	13	18	500	1800
2014	3	17	13	500	2000
2014	3	20	18	500	1000
2014	3	20	19	2000	2500
2014	3	20	20	2000	2500

Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2014	4	14	19	500	1200
2014	4	14	20	1500	2000
2014	4	24	10	500	2000
2014	5	15	14	500	1000
2014	5	15	15	2000	2200
2014	5	15	19	500	1000
2014	5	15	20	1500	2500
2014	5	16	12	500	2000
2014	5	16	13	3000	3100
2014	5	17	15	500	1000
2014	5	17	16	2000	2200
2014	5	17	20	500	1000
2014	5	17	21	1000	2000
2014	5	18	19	500	1500
2014	5	18	20	1700	1800
2014	5	20	12	500	2000
2014	5	20	13	2000	3700
2014	5	20	14	4000	5500
2014	5	20	19	500	1000
2014	5	20	20	1500	1800
2014	5	20	21	2000	4000
2014	5	21	6	500	800
2014	5	21	7	1500	1700
2014	5	21	8	2100	2200
2014	5	21	9	4000	5000
2014	5	21	20	500	1500
2014	5	22	7	500	1800
2014	5	22	8	2000	3000
2014	5	22	19	500	1500
2014	5	22	20	1800	2200

Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2014	5	23	8	500	2000
2014	5	23	9	2700	2900
2014	5	23	20	500	2000
2014	5	23	21	2500	2800
2014	5	23	22	3000	3100
2014	5	23	23	3500	3600
2014	5	25	7	500	2000
2014	5	25	8	2000	3500
2014	5	26	10	500	1000
2014	5	26	11	1000	2500
2014	5	26	12	2500	5000
2014	5	26	20	500	1600
2014	5	26	21	2000	3000
2014	5	26	22	3000	4000
2014	5	27	9	500	3000
2014	5	27	20	500	3000
2014	5	29	7	500	1500
2014	5	29	8	2000	3000
2014	6	2	22	500	1000
2014	6	2	23	1800	2000
2014	6	2	24	3000	4000
2014	6	2	25	5000	6000
2014	6	5	6	500	1500
2014	6	5	19	500	800
2014	6	7	7	200	500
2014	6	9	16	500	1500
2014	6	9	17	2000	3000
2014	6	10	15	500	1500
2014	6	10	16	2000	3000
2014	6	10	20	500	2000
Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
------	-------	-----	------	----------	---------
2014	6	11	6	500	1500
2014	6	11	7	2000	3000
2014	6	11	22	500	1500
2014	6	11	23	2000	3000
2014	6	12	17	500	1500
2014	6	12	18	2000	3000
2014	6	12	21	500	1000
2014	6	12	22	1000	2000
2014	6	12	23	2000	3000
2014	6	13	17	500	1500
2014	6	13	18	2000	3000
2014	6	14	19	500	800
2014	6	14	20	1000	1700
2014	6	14	21	1800	2800
2014	6	14	22	3000	3100
2014	6	15	8	500	1500
2014	6	15	9	1500	3000
2014	6	16	7	500	1000
2014	6	16	8	1400	1500
2014	6	16	9	2100	2200
2014	6	16	19	500	900
2014	6	16	20	1000	1800
2014	6	16	21	2000	2800
2014	6	17	22	500	800
2014	6	17	23	1000	3000
2014	6	17	24	4000	5000
2014	6	18	19	500	4000
2014	6	19	9	500	2000
2014	6	21	13	500	1000
2014	6	21	14	2000	3000

2014         6         21         19         500         2000           2014         6         21         20         2700         3000           2014         6         22         20         500         3000           2014         7         3         19         500         1000           2014         7         3         20         1800         3000           2014         7         3         19         5000         8000           2014         7         7         12         500         3000           2014         7         7         21         2800         3000           2014         7         7         21         2800         3000           2014         7         8         8         500         2000           2014         7         8         9         3500         4000           2014         7         10         19         500         2000           2014         7         14         19         3000         2000           2014         7         17         20         500         3000           2014         7<	Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2014621202700300020147319500100020147320180030002014731950008000201477205002000201477212800300020147885002000201478935004000201478935004000201478950050002014710195002000201471420200020002014714203000200020147142030002000201471421200030002014721200030002000201472120003000201472120003000201472418500200020147281150010002014728121800250020147282050015002014728205001500201472821190021002014728211900210020147282119002100	2014	6	21	19	500	2000
201462220500300201473195001002014731950080020147712500300201477205002002014772128003002014788500200201478935004002014789500200201471019500200201471419500200201471421280030020147172120030020147142030020020147241850020020147241850020020147281150030020147281218002002014728121002002014728132503002014728143504002014728143504002014728143504002014728205010020147282050100201472820501002014 <td< td=""><td>2014</td><td>6</td><td>21</td><td>20</td><td>2700</td><td>3000</td></td<>	2014	6	21	20	2700	3000
20147319500100020147320180030012014771250030012014772050020012014772128003001201478850020012014789300400120147819500400020147101950020012014714195002001201471421280030012014717212000300120147142120003001201472120030013001201472418500200020147241850020012014728115003001201472812180020012014728132500300120147281350010012014728143500400020147281219002101201472812200300120147282050015012014728205001501201472820500<	2014	6	22	20	500	3000
201473201800300020147319500800020147720500200020147721280030002014788500200020147893500400020147893500400020147819500500020147101950020002014714202000200020147142128003000201471720500200020147172120030002014721200300020002014723201500300020147241850020002014728115003000201472812180025002014728132500310020147281435004000201472820500310020147282119002100201472821190021002014728213003000201472821300300201472820300	2014	7	3	19	500	1000
20147319500080002014771250030002014772128003000201478850020002014789350040002014789500500020147819500500020147101950020002014714202000200020147142030002000201471420300020002014717212003000201471721200300020147212003000200020147231150010002014728121800250020147281325003100201472814350040002014728143500400020147282050015002014728211900210020147282119002100201472821190021002014731115001800	2014	7	3	20	1800	3000
20147712500300120147720500200020147885002000201478935004000201478195005002014710195002000201471419500200020147142020002500201471420200025002014714212800300020147172050020002014721200300020002014721200300020002014724185002000201472811500100020147281325003100201472814350040002014728205001500201472821190021002014728222200300020147282119002100201472821190030002014728212003000201472821350040002014728203003000201472821350	2014	7	3	19	5000	8000
2014772050020002014788500200020147893500400020147819500500020147101950020002014714195002000201471420200025002014714212800300020147142120003000201471720500200020147212003000200020147212003000200020147241850020002014728115001000201472813250031002014728143500400020147282050015002014728211900210020147282222003000201472821190021002014728211900300020147282222003000201472821190030002014728211900300020147282119003000201472821 <t< td=""><td>2014</td><td>7</td><td>7</td><td>12</td><td>500</td><td>3000</td></t<>	2014	7	7	12	500	3000
20147721280030012014789350040012014781950050012014710195002000201471419500200020147142020002500201471421280030002014717205002000201471721200030002014721200300020147212003000201472418500200020147281150010002014728132500310020147281435004000201472820500310020147282119002100201472821300300201472821300300201472821300300201472821300300201472821300300201472821300300201472821300300201472821300300201472821300300201	2014	7	7	20	500	2000
201478850020002014789350040002014781950050002014710195002000201471420200025002014714212800300020147172050020002014717205003000201472120003000201472120030002014721200300020147241850020002014728115001000201472813250031002014728143500400020147282050015002014728205001500201472820500150020147282119002100201472821300210020147282130030002014728213003002014728205001500201472821300300201473111500160020147313111500300 <td< td=""><td>2014</td><td>7</td><td>7</td><td>21</td><td>2800</td><td>3000</td></td<>	2014	7	7	21	2800	3000
20147893500400020147101950040002014714195002000201471420200025002014714212800300020147172050020002014717205003000201472120003000201472120030002014724185002000201472811500100020147281325003100201472813250031002014728143500400020147282050015002014728211900210020147282222003000201472821190021002014728211900210020147282119002100201472822220030002014731115001800	2014	7	8	8	500	2000
2014781950050020147101950040002014714195002500201471420200025002014714212800300020147172050020002014717212000300020147212000300020147212003000201472418500200020147281150030002014728132500310020147281325003100201472820500150020147282119002100201472822220030002014728211900210020147282119002100201472822220030002014728211900210020147282119002100201472822220030002014731115001800	2014	7	8	9	3500	4000
2014710195004000201471419500200020147142020002500201471421280030002014717205002000201472120003000201472120500300020147241850020002014724192100220020147281150010002014728132500310020147281435004000201472820500150020147282119002100201472821300300020147282150030002014728215001500201472821190021002014728211900100020147282119001000201472821190010002014728211900100020147282119001000201473111500100020147282101900100020147282101900<	2014	7	8	19	500	5000
20147141950020002014714202000300020147172050020002014717212000300020147212005003000201472120500300020147241850020002014724192100220020147281150010002014728132500310020147281435004000201472820500150020147282190021002014728215001500201472821500150020147282150015002014728215001600201472821190021002014731115001800	2014	7	10	19	500	4000
201471420200025002014714212800300020147172050020002014721200030002014721205002000201472418500200020147241921002200201472420310032002014728115001000201472813250031002014728205001500201472821190021002014728215003000201472821500300020147282150030002014728215003000201472821500300020147282150030002014728211900210020147282150030002014731115001800	2014	7	14	19	500	2000
201471421280030002014717205002000201471721200030002014721205003000201472418500200020147241921002200201472420310032002014728115001000201472812180025002014728143500400020147282050015002014728211900210020147282135003000201472821190021002014728211900210020147281150018002014728115001800201472812190021002014731115001800	2014	7	14	20	2000	2500
2014717205002000201471721200030002014721205003000201472418500200020147242031003200201472420310032002014728115001000201472813250031002014728143500400020147282050015002014728211900210020147282150030002014731115001800	2014	7	14	21	2800	3000
2014717212000300020147212050030002014724185002000201472419210022002014724203100320020147281150010002014728132500310020147281435004000201472820500150020147282119002100201472821300030002014731115001800	2014	7	17	20	500	2000
2014721205003000201472418500200020147241921002200201472420310032002014728115001000201472812180025002014728143500400020147282050015002014728211900210020147282150030002014731115001800	2014	7	17	21	2000	3000
201472418500200020147241921002200201472420310032002014728115001000201472812180025002014728132500310020147281435004000201472820500150020147282119002100201472822220030002014731115001800	2014	7	21	20	500	3000
201472419210022002014724203100320020147281150010002014728121800250020147281325003100201472814350040002014728205001500201472821190021002014731115001800	2014	7	24	18	500	2000
2014724203100320020147281150010002014728121800250020147281325003100201472820500150020147282119002100201472822220030002014731115001800	2014	7	24	19	2100	2200
201472811500100020147281218002500201472813250031002014728143500400020147282050015002014728211900210020147282230002014731115001800	2014	7	24	20	3100	3200
201472812180025002014728132500310020147281435004000201472820500150020147282119002100201472822220030002014731115001800	2014	7	28	11	500	1000
2014728132500310020147281435004000201472820500150020147282119002100201472822220030002014731115001800	2014	7	28	12	1800	2500
20147281435004000201472820500150020147282119002100201472822220030002014731115001800	2014	7	28	13	2500	3100
201472820500150020147282119002100201472822220030002014731115001800	2014	7	28	14	3500	4000
20147282119002100201472822220030002014731115001800	2014	7	28	20	500	1500
2014     7     28     22     2200     3000       2014     7     31     11     500     1800	2014	7	28	21	1900	2100
2014 7 31 11 500 1800	2014	7	28	22	2200	3000
	2014	7	31	11	500	1800

Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2014	7	31	12	2000	3000
2014	7	31	20	800	1500
2014	7	31	21	1500	2000
2014	9	1	11	500	2000
2014	9	1	12	2200	2900
2014	9	1	13	3100	3500
2014	9	1	19	500	2000
2014	9	1	20	3500	4000
2014	10	2	19	500	1500
2014	10	2	20	4000	4100
2014	10	13	17	500	2000
2014	10	13	18	2900	3100
2014	10	13	19	5000	6000
2014	10	20	12	500	1800
2014	10	20	18	500	1000
2014	11	3	14	500	1500
2014	11	3	17	500	1500
2014	11	10	12	500	2000
2014	11	10	18	500	2000
2014	11	10	19	3000	3500
2014	11	10	20	4000	4200
2014	11	10	21	3000	3500
2014	11	10	22	4000	4200
2014	12	18	18	500	800
2014	12	18	19	800	1000
2014	12	18	20	2000	2200
2014	12	18	21	2500	2800
2014	12	22	13	500	1500
2015	1	15	17	500	1000
2015	1	15	18	500	1000

Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2015	2	4	15	500	2000
2015	2	5	10	500	2000
2015	2	5	11	3000	4000
2015	2	5	16	500	1000
2015	2	5	17	2000	3000
2015	2	6	14	500	1500
2015	2	6	17	500	1500
2015	2	7	17	500	2000
2015	2	19	18	500	2000
2015	3	30	12	500	2000
2015	4	6	18	500	2000
2015	4	16	18	500	1800
2015	4	16	19	1900	2000
2015	5	14	19	500	1500
2015	5	14	20	2000	2200
2015	5	14	21	3000	5000
2015	5	18	13	500	1000
2015	5	18	14	1500	1600
2015	5	18	15	2500	3000
2015	5	18	16	4000	5500
2015	5	25	19	500	1000
2015	5	25	20	1000	2000
2015	6	25	19	500	2000
2015	6	25	20	2800	3000
2015	7	2	20	800	2000
2015	7	2	21	2000	2200
2015	7	9	20	500	1800
2015	7	9	21	1800	2000
2015	7	13	11	1000	2000
2015	7	13	20	800	2000

Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2015	7	13	21	2000	2200
2015	7	13	22	2500	3000
2015	7	16	20	800	1000
2015	7	16	21	1500	2500
2015	7	17	17	1000	2000
2015	7	17	18	2800	3000
2015	7	17	19	800	1000
2015	7	17	20	1000	2000
2015	7	17	21	2800	3000
2015	7	18	19	800	1200
2015	7	18	20	1800	2000
2015	7	20	13	800	2000
2015	7	20	14	2500	4000
2015	7	20	19	800	1000
2015	7	20	20	2500	4000
2015	7	21	19	800	2000
2015	7	23	17	800	1500
2015	7	23	20	800	1000
2015	7	27	19	800	1200
2015	7	27	20	1200	2000
2015	8	31	13	800	1500
2015	8	31	14	2000	2200
2015	8	31	15	2000	2200
2015	9	7	12	800	3500
2015	10	1	17	800	1000
2015	10	8	18	800	1000
2015	10	8	19	1000	3000
2015	10	12	12	800	1000
2015	10	12	13	1000	2500
2015	10	12	14	1000	2500

Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2015	11	2	12	800	1500
2015	11	5	17	800	1000
2015	11	9	12	800	1000
2015	11	19	17	800	1000
2015	11	19	18	1000	1200
2015	11	30	12	800	1500
2015	12	7	17	800	1000
2015	12	21	17	800	1000
2015	12	22	16	900	1100
2015	12	22	17	900	1100
2015	12	23	17	800	1000
2015	12	28	16	800	1000
2015	12	29	16	800	1200
2016	1	7	16	800	1200
2016	1	7	17	800	1200
2016	1	11	12	800	1500
2016	1	13	10	800	1500
2016	1	14	17	800	2000
2016	1	25	19	1800	2000
2016	1	27	17	800	1000
2016	1	28	17	800	1000
2016	2	1	17	800	1500
2016	2	2	17	1000	1200
2016	2	3	17	800	1400
2016	2	8	17	800	1000
2016	2	11	18	800	1000
2016	2	11	19	800	1000
2016	2	19	16	800	1000
2016	2	19	17	1000	2000
2016	2	19	20	1700	1800

Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2016	2	25	17	800	1000
2016	2	25	18	1700	1800
2016	2	25	19	2000	2100
2016	2	25	20	1700	1800
2016	3	2	17	800	1000
2016	3	2	18	800	1000
2016	3	7	13	800	1000
2016	3	7	18	800	1000
2016	3	7	19	2800	3000
2016	3	21	12	800	1000
2016	3	21	13	1000	1500
2016	3	21	14	2000	4000
2016	3	21	15	4800	4900
2016	3	21	16	5500	6000
2016	3	28	18	800	2000
2016	3	28	19	2000	2300
2016	4	4	12	800	1100
2016	4	4	13	1200	3000
2016	4	4	14	6000	7000
2016	4	4	18	800	1100
2016	4	4	19	1200	3100
2016	4	4	20	5800	7000
2016	4	11	18	800	2000
2016	4	11	19	2000	4000
2016	4	18	14	800	1500
2016	4	18	15	2900	3100
2016	5	9	18	800	1500
2016	5	9	19	1700	2000
2016	5	9	20	2000	3000
2016	5	9	21	3500	4000

Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2016	5	16	18	800	2000
2016	6	2	7	1000	2000
2016	6	2	8	2000	3000
2016	6	2	9	3000	5000
2016	6	2	15	800	1000
2016	6	2	16	1000	2000
2016	6	2	17	2200	3800
2016	6	2	18	1000	3000
2016	6	6	12	800	2000
2016	6	27	19	800	1800
2016	6	27	20	1800	4000
2016	6	28	7	800	1500
2016	6	28	8	1500	4000
2016	7	4	19	800	1000
2016	7	4	20	1500	2000
2016	7	7	19	800	1200
2016	7	7	20	1200	2000
2016	7	7	21	2000	3000
2016	7	11	14	800	2000
2016	7	11	18	1500	2000
2016	7	14	19	800	1000
2016	7	14	20	1500	2000
2016	7	18	11	800	2000
2016	7	18	19	800	1000
2016	7	18	20	1000	2200
2016	7	21	18	1800	2000
2016	7	21	19	1800	2000
2016	8	30	7	1000	2000
2016	8	30	8	2000	3000
2016	9	15	17	800	1000

201691518 $1000$ $2500$ $2016$ 91519 $2500$ $3200$ $2016$ 91919800 $1000$ $2016$ 91920 $1000$ $3000$ $2016$ 91921 $1000$ $3000$ $2016$ 92617 $800$ $1000$ $2016$ 92618 $2000$ $3000$ $2016$ 92618 $2000$ $3000$ $2016$ 92718 $800$ $2000$ $2016$ 92917 $800$ $1500$ $2016$ 1038 $800$ $2000$ $2016$ 1039 $2000$ $3000$ $2016$ 10310 $3500$ $4000$ $2016$ 10321 $2700$ $3000$ $2016$ 1047 $1000$ $2700$ $2016$ 10612 $800$ $2500$ $2016$ 10617 $800$ $1000$	
2016915192500320020169191980010002016919201000300020169261780010002016926182000300020169261820003000201692718800200020169281080020002016103880020002016103920003000201610310350040002016103198001000201610321270030002016103212700300020161061280025002016106128002500201610612800250020161061280025002016106128002500201610612800250020161061280025002016106128002500201610612800250020161061810002000	
2016919198001000201691920100030002016926178001000201692618200030002016927188003000201692718800200020169281080020002016929178001500201610388002000201610392000300020161031035004000201610321270030002016104710002700201610612800250020161061810002000	
201691920100030002016926178001000201692618200030002016927188003000201692718800200020169281080020002016929178001500201610388002000201610392000300020161031035004000201610320100025002016104710002700201610612800100020161061810002000	
201691921100030002016926178001000201692618200030002016927188002000201692810800200020169291780015002016103880020002016103920003000201610310350040002016103201000250020161044710002700201610617800100020161061810002000	
201692617800100020169261820003000201692718800200020169281080020002016929178001500201610388002000201610392000300020161031035004000201610320100025002016104710002700201610612800100020161061810002000	
2016926182000300020169271880030002016928108002000201692917800150020161038800200020161039200030002016103103500400020161032010002500201610321270030002016106128002500201610617800100020161061810002000	
20169271880030002016928108002000201692917800150020161038800200020161039200030002016103103500400020161031980010002016103201000250020161047100027002016106128002500201610617800100020161061810002000	
201692810800200020169291780015002016103880020002016103920003000201610310350040002016103198001000201610321270030002016104710002700201610612800100020161061810002000	
2016929178001500201610388002000201610392000300020161031035004000201610319800100020161032010002500201610471000270020161061280025002016106178001000	
201610388002000201610392000300020161031035004000201610319800100020161032010002500201610321270030002016106128002500201610617800100020161061810002000	
201610392000300020161031035004000201610319800100020161032010002500201610321270030002016106128002500201610617800100020161061810002000	
20161031035004000201610319800100020161032010002500201610321270030002016104710002700201610612800250020161061810002000	
2016103198001000201610320100025002016103212700300020161047100027002016106128002500201610617800100020161061810002000	
201610320100025002016103212700300020161047100027002016106128002500201610617800100020161061810002000	
2016103212700300020161047100027002016106128002500201610617800100020161061810002000	
2016       10       4       7       1000       2700         2016       10       6       12       800       2500         2016       10       6       17       800       1000         2016       10       6       18       1000       2000	
2016         10         6         12         800         2500           2016         10         6         17         800         1000           2016         10         6         18         1000         2000	
2016     10     6     17     800     1000       2016     10     6     18     1000     2000	
2016 10 6 18 1000 2000	
2016 10 6 19 5000 5500	
2016 10 13 10 800 2000	
2016 11 3 16 800 1500	
2016 11 3 17 2800 3000	
2016 11 24 17 800 1000	
2016 11 24 18 2000 3000	
2016 12 8 17 800 1000	
2017 5 15 10 800 1500	
2017 5 15 11 2000 3000	
2017 5 20 8 800 1500	

Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2017	5	20	9	2000	2500
2017	5	30	9	800	2000
2017	5	30	10	2000	2800
2017	5	31	11	1000	2500
2017	6	1	10	1000	2000
2017	6	1	11	2800	3200
2017	6	1	19	1000	1500
2017	6	1	20	1800	2000
2017	6	1	21	2500	3000
2017	6	6	10	800	1500
2017	6	6	11	1800	2500
2017	6	6	12	5000	6000
2017	6	19	19	1500	2000
2017	6	22	19	800	1800
2017	6	22	20	1800	3000
2017	7	10	8	800	1500
2017	7	10	9	2000	2500
2017	7	10	10	3000	4000
2017	7	10	19	1000	2000
2017	7	10	20	3000	4000
2017	7	10	21	1000	2000
2017	7	12	12	800	3000
2017	7	13	9	800	2000
2017	7	13	10	2800	3500
2017	7	24	18	800	3000
2017	7	24	19	4000	6000
2017	8	28	9	800	2000
2017	8	28	10	2000	3000
2017	8	28	18	800	1500
2017	8	28	19	2000	2800

Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2017	8	31	9	800	2000
2017	9	4	10	800	2000
2017	9	4	18	800	3000
2017	9	7	9	800	2000
2017	9	7	18	1000	2500
2017	9	11	10	1500	2000
2017	9	11	11	2000	5000
2017	9	11	12	2000	5000
2017	9	11	17	800	5000
2017	9	14	10	800	3000
2017	9	14	11	4000	4500
2017	9	14	12	800	3000
2017	9	14	13	4000	4500
2017	9	14	18	1000	2000
2017	9	14	19	3000	3500
2017	9	14	20	1000	2000
2017	9	14	21	3000	3500
2017	9	18	10	1000	1800
2017	9	18	11	2000	4000
2017	9	18	17	800	3500
2017	9	19	8	1000	1800
2017	9	19	9	1800	3000
2017	9	21	17	1500	2200
2017	10	5	15	1000	2000
2017	10	9	10	800	2000
2017	10	9	17	800	2000
2017	10	19	12	800	1500
2017	10	19	16	1000	2000
2017	10	20	10	800	1200
2017	10	20	11	1200	3000

Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2017	10	21	9	2000	2500
2017	11	2	15	800	1800
2017	11	20	16	800	2000
2017	11	20	17	800	2000
2017	11	23	16	800	1000
2017	11	24	12	800	1000
2017	11	24	13	800	1000
2018	1	29	17	1000	1700
2018	2	1	16	1000	1500
2018	2	1	17	2700	2800
2018	2	1	18	5000	5300
2018	2	8	17	1000	2000
2018	3	8	17	1000	2000
2018	3	10	10	900	1200
2018	3	20	15	1000	3000
2018	3	26	12	1000	3000
2018	3	27	9	1000	2300
2018	3	29	16	1000	1500
2018	3	29	18	1000	1500
2018	3	30	10	2000	2250
2018	4	12	12	2000	4000
2018	4	16	18	1000	3000
2018	4	19	18	1000	2000
2018	4	19	19	2500	3100
2018	4	19	20	4400	4600
2018	5	21	10	1000	2000
2018	5	21	11	2000	4300
2018	7	12	10	1000	2500
2018	8	30	11	1000	2000
2018	8	30	12	4000	4200

Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2018	9	3	11	1000	2500
2018	9	3	12	3000	3300
2018	9	5	9	3000	4000
2018	9	10	17	1000	2000
2018	9	13	17	1000	2000
2018	9	13	18	2000	3000
2018	9	17	10	1000	2000
2018	9	17	17	2000	2300
2018	9	20	15	1000	2000
2018	9	20	16	5000	6000
2018	9	20	17	1000	2500
2018	9	20	18	4400	5000
2018	9	24	17	1000	2000
2018	10	8	9	1500	2000
2018	10	8	10	3000	3500
2018	10	29	14	1500	3000
2018	10	29	16	1500	3000
2019	1	17	15	800	1300
2019	1	17	17	600	700
2019	2	18	10	2450	2550
2019	2	20	13	1000	1500
2019	2	20	14	1600	1700
2019	2	20	15	2500	2800
2019	5	6	12	1500	2500
2019	5	16	9	1300	1650
2019	5	23	10	2500	3100
2019	5	28	10	1200	1700
2019	5	28	11	2800	3500
2019	5	30	13	1000	2800
2019	6	3	11	2500	3000

Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2019	6	13	10	3000	4000
2019	7	2	14	1000	2000
2019	7	13	6	1700	2300
2019	7	17	17	3000	3500
2019	7	18	7	2500	3000
2019	7	18	19	1000	3000
2019	7	19	19	1000	2800
2019	7	23	10	2000	2650
2019	7	23	11	3500	4500
2019	7	23	18	2500	3000
2019	7	25	19	2000	2500
2019	7	26	7	2000	2850
2019	7	26	18	2000	2750
2019	7	27	7	2000	2500
2019	7	29	10	1000	2000
2019	7	29	18	1900	1100
2019	7	31	6	2000	2400
2019	7	31	7	3100	3500
2019	7	31	19	1300	1500
2019	8	26	18	1500	4000
2019	9	2	7	1500	2300
2019	9	6	7	2400	3500
2019	9	9	14	2000	2500
2019	9	9	17	2000	3000
2019	9	17	13	1100	2000
2019	9	23	11	2000	2300
2019	9	23	12	2500	3500
2019	9	26	11	1000	1600
2019	9	26	17	2700	2900
2019	9	27	8	2000	2500

Year	Month	Day	Hour	Base [m]	Top [m]
2019	9	30	9	2900	3200
2019	10	1	15	2000	2500
2019	10	9	11	1200	3000

Table 15. Geometrical properties of the smoke and mixed aerosol layers observed over Athens by the multi-wavelength Mie-Raman EOLI	E lidar
system within the time period 2011-2019.	

No	Date [yyymmdd]	Bottom [m]	Top [m]
1	20110516	3062	3542
9	20120326	2402	3182
13	20121025	2282	2522
21	20140901	3422	3902
27	20160915	3002	3242
34	20190909	2522	3062
2	20110630	1502	1922
6	20110915	1442	2042
7	20120315	1622	2042
10	20120406	1442	2102
16	20140523	1082	2042
18	20140622	1382	2102
20	20140724	1322	1622
23	20150713	2402	2882
24	20150727	1382	2222
28	20170710	1382	1922
3	20110728	1562	1802
12	20120919	2162	3482
30	20170828	2342	2942
11	20120612	1442	1982
31	20170911	1622	4682
33	20190826	1382	3962
5	20110909	1742	2042
8	20120322	1442	1802

No	Date [yyymmdd]	Bottom [m]	Top [m]
17	20140617	1262	3242
29	20170724	1442	2942
35	20191029	1682	2282
14	20140517	1682	1862
15	20140520	1202	2102
19	20140717	1382	1742
22	20150219	1442	1562
25	20150727	1622	2222
26	20160704	1562	1982
32	20180913	2222	2762

**Table 16.** Geometrical properties of the aerosol layers observed over Volos, Greece, by the AIAS mobile depolarization lidar during the Panhellenic Infrastructure for Atmospheric Composition and Climate Change Project (PANACEA) summer campaign (July 2019).

Year	Month	Day	Bottom [m]	Top [m]	
2019	7	12	1000	2000	
2019	7	12	1000	2000	
2019	7	13	1000	2800	
2019	7	14	1000	3000	
2019	7	17	1000	3000	
2019	7	18	1000	3000	
2019	7	18	1000	2000	
2019	7	18	2000	3000	
2019	7	18	1000	3000	
2019	7	19	1000	3000	
2019	7	19	1000	3000	
2019	7	19	1000	3000	
2019	7	20	1000	3000	
2019	7	20	1000	2000	
2019	7	20	1000	2000	
2019	7	21	1000	3000	

Year	Month	Day	Bottom [m]	Top [m]
2019	7	21	1000	2500
2019	7	22	1000	2500
2019	7	22	3000	3500
2019	7	22	1000	2500
2019	7	22	1000	2000
2019	7	23	1000	2000
2019	7	23	3000	3200
2019	7	23	1000	2000
2019	7	24	1000	3000
2019	7	25	1000	2500
2019	7	25	1000	2000
2019	7	25	1000	2000
2019	7	25	2000	3000
2019	7	27	1500	2000
2019	7	27	2000	3000
2019	7	27	1000	2000
2019	7	27	2000	3000
2019	7	27	1000	2500
2019	7	28	1000	2000
2019	7	28	2000	3000
2019	7	28	1000	2000
2019	7	28	3000	3200
2019	7	28	1000	2000
2019	7	28	3300	3500
2019	7	29	1000	3000
2019	7	30	1000	2000
2019	7	30	1000	2000
2019	7	30	1000	3000
2019	7	31	1000	1500
2019	7	31	1500	2500

No	Date	Time (UTC)	Aerosol Type
1	12 July	11:09	smoke
8	18 July	12:10	smoke
9	18 July	15:56	smoke
11	19 July	12:35	smoke
12	19 July	14:59	smoke
20	22 July	11:53	smoke
21	22 July	16:13	smoke
23	23 July	09:30	smoke
24	23 July	11:53	smoke
31	27 July	12:01	smoke
38	29 July	16:41	smoke
2	12 July	15:04	continental polluted + marine
14	20 July	12:11	continental polluted + marine
15	20 July	14:01	continental polluted + marine
22	23 July	09:30	continental polluted + marine
27	25 July	11:00	continental polluted + marine
28	25 July	15:30	continental polluted + marine
34	28 July	12:07	continental polluted + marine
40	30 July	16:29	continental polluted + marine
41	31 July	09:44	continental polluted + marine
3	13 July	15:49	dust mixtures
4	14 July	11:53	dust mixtures
25	24 July	14:49	dust mixtures
35	28 July	12:07	dust mixtures

**Table 17.** Typing results of the aerosol layers observed over Volos, Greece by the AIAS mobile depolarization lidar system during the PANhellenic infrastructure for Atmospheric Composition and climatE chAnge (PANACEA) summer campaign, July 2019, and as classified by the Source Classification Analysis (SCAN).

No	Date	Time (UTC)	Aerosol Type
37	28 July	15:00	dust mixtures
5	17 July	15:52	continental polluted
6	18 July	09:08	continental polluted
7	18 July	12:10	continental polluted
10	19 July	06:08	continental polluted
13	20 July	06:04	continental polluted
16	21 July	05:52	continental polluted
17	21 July	12:06	continental polluted
18	22 July	06:02	continental polluted
19	22 July	06:02	continental polluted
26	25 July	08:29	continental polluted
29	27 July	08:58	continental polluted
30	27 July	08:58	continental polluted
32	27 July	15:00	continental polluted
33	28 July	08:30	continental polluted
36	28 July	15:00	continental polluted
39	30 July	07:00	continental polluted
42	31 July	09:44	continental polluted

Table 18. Typing of the aerosol layers observed over Athens, Greece during nighttime lidar measurements by the EOLE lidar, w	vithin the time
period 2014-2019, as classified by the Source Classification Analysis (SCAN).	

No	Date (yyyymmdd)	Time (UTC)	Aerosol Type
1	20140213	18:26	continental polluted
2	20140213	19:27	continental polluted
3	20150625	20:32	continental polluted
4	20150713	20:29	continental polluted
5	20150718	19:53	continental polluted
6	20160926	16:51	continental polluted
7	20160926	17:51	continental polluted
8	20160926	18:52	continental polluted
9	20160926	19:52	continental polluted

No	Date (yyyymmdd)	Time (UTC)	Aerosol Type
10	20180129	17:28	continental polluted
11	20150716	18:38	continental polluted + marine
12	20150716	19:39	continental polluted + marine
13	20150716	20:39	continental polluted + marine
14	20160509	18:48	continental polluted + marine
15	20160627	18:23	continental polluted + marine
16	20160718	19:22	continental polluted + marine
17	20161124	16:30	continental polluted + marine
18	20140602	21:07	dust
19	20140602	22:07	dust
20	20160404	17:26	dust
21	20140526	19:08	dust mixtures
22	20140526	20:08	dust mixtures
23	20140526	21:09	dust mixtures
24	20150205	16:39	dust mixtures
25	20160404	17:26	dust mixtures
26	20160411	17:29	dust mixtures
27	20160411	19:26	dust mixtures
28	20170601	18:17	dust mixtures
29	20170601	19:17	dust mixtures
30	20170710	18:17	dust mixtures
31	20170710	19:17	dust mixtures

**Table 19.** SZA, AOD, and aerosol type of the aerosol layers observed over Athens, Greece during daytime lidar measurements (2014-2019) and studied for the assessment of their radiative effects.

Number	SZA (°)	AOD	Aerosol Type
1	37.00	0.036	continental polluted
2	31.84	0.042	continental polluted
3	45.37	0.017	continental polluted
4	57.82	0.037	continental polluted
5	46.31	0.049	continental polluted

Number	SZA (°)	AOD	Aerosol Type	
6	60.84	0.018	continental polluted	
7	49.33	0.032	continental polluted	
8	53.91	0.033	continental polluted	
9	44.95	0.028	continental polluted	
10	72.7	0.115	continental polluted	
11	69.24	0.042	continental polluted	
12	72.18	0.012	continental polluted	
13	75.57	0.013	continental polluted	
14	64.37	0.016	continental polluted	
15	74.06	0.054	continental polluted	
16	38.22	0.035	continental polluted+marine	
17	27.96	0.025	continental polluted+marine	
18	20.59	0.023	continental polluted+marine	
19	19.85	0.02	continental polluted+marine	
20	26.32	0.023	continental polluted+marine	
21	36.26	0.032	continental polluted+marine	
22	47.41	0.031	continental polluted+marine	
23	58.91	0.032	continental polluted+marine	
24	56.67	0.041	continental polluted+marine	
25	52.42	0.079	continental polluted+smoke	
26	44.79	0.076	continental polluted+smoke	
27	18.63	0.231	dust	
28	22.21	0.219	dust	
29	38.93	0.038	dust	
30	28.23	0.061	dust	
31	19.82	0.09	dust	
32	17.63	0.115	dust	
33	23.54	0.055	dust	
34	33.37	0.059	dust	
35	37	0.079	dust	

Number	SZA (°)	AOD	Aerosol Type	
36	26.56	0.274	dust	
37	18.96	0.266	dust	
38	18.34	0.251	dust	
39	50.32	0.073	dust	
40	44.52	0.043	dust	
41	56.02	0.026	dust	
42	45.76	0.06	dust	
43	40.47	0.061	dust	
44	59.83	0.235	dust	
45	48.31	0.141	dust	
46	40.66	0.321	dust	
47	52.42	0.079	dust	
48	44.79	0.076	dust	
49	21.56	0.125	mixed dust	
50	46.93	0.045	mixed dust	
51	44.76	0.047	mixed dust	
52	45.76	0.04	mixed dust	
53	40.47	0.043	mixed dust	
54	57.49	0.092	mixed dust	
55	48.21	0.079	mixed dust	
56	41.32	0.081	mixed dust	
57	84.48	0.069	mixed dust	
58	80.7	0.07	mixed dust	
59	79.34	0.1	mixed dust	
60	68.08	0.107	mixed dust	
61	70.89	0.018	mixed dust	
62	80.7	0.02	mixed dust	

<u>×</u>	Continental polluted	Smoke	Continental polluted+Smoke	Continental polluted+Marine	Mixed dust	Smoke+Mixed dust
Number of layers	49	22	26	19	16	18
LR355 [sr]	50-53±10	46-57±10	51-52±8	45-57±7	48±10	39±5
LR532 [sr]	49-63±20	37-73±4	47-59±10	55-57±9	41±9	62±12
ΑΕα355/α532	1.5±0.3	0.9-1.6±0.5	$1.1\text{-}1.5\pm0.4$	0.3±0.3	0.5±0.9	0.5±0.9
ΑΕβ355/β532	1.2-1.5±0.3	0.9-1.4±0.3	$0.8-1.4\pm0.4$	0.5-0.9±0.3	0.5±0.3	1.6±0.2
ΑΕβ532/β1064	1.0±0.2	1.3-1.7±0.2	1.3-1.7±0.2	0.7±0.2	1.6±0.1	1.6±0.1
δ <sub>aer,532</sub> [%]	3.3-4±1.3	3-6±1	4.0±1.9	4-8 <u>+</u> 4	20±4	20±4
n		1.49±0.06	1.50±0.07			1.53±0.07
k		0.013±0.004i	0.011±0.005i			0.011±0.005i
Vc [µm <sup>-3</sup> cm <sup>-3</sup> ]		8.6±3.2	20.7±14.1			9.7±6.1
SSA 355 nm		0.916±0.042	0.929±0.036*			$0.928 \pm 0.037$
SSA 532 nm		0.932±0.023	0.936±0.024			0.933±0.025
SSA 1064 nm		$0.918 \pm 0.008$	0.923±0.031*			0.915±0.045

**Table 20.** Optical and microphysical properties of various aerosols observed over Europe (Kuopio, Bucharest, Leipzig, Potenza, Athens, Volos)

 (number of aerosol layer observations for each type >15) characterized by the SCAN algorithm.

## REFERENCES

- Anjilvel S, Asgharian B (1995). A multiple-path model of particle deposition in the rat lung. *Fundamental Applied Toxicology*, 28(1), 41-50. https://doi.org/10.1006/faat.1995.1144
- Adam, M., Nicolae, D., Belegante, L., Stachlewska, I., Janicka, L., Szczepanik, D., Mylonaki, M., Papanikolaou, C. A., Siomos, N., Voudouri, K. A., Alados-Arboledas, L., Bravo-Aranda, J. A., Apituley, A., Papagiannopoulos, N., Mona, L., Mattis, I., Chaikovsky, A., Sicard, M., Muñoz-Porcar, C., Peshev, Z. (2020). Biomass burning events measured by lidars in EARLINET. Part II. Results and discussions. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, July*, 1–45. https://doi.org/10.5194/acp-2020-647
- Alados-Arboledas, L., Müller, D., Guerrero-Rascado, J. L., Navas-Guzmán, F., Pérez-Ramírez, D., Olmo, F. J. (2011). Optical and microphysical properties of fresh biomass burning aerosol retrieved by Raman lidar, and star-and sun-photometry. *Geophysical Research Letters*, 38(1), 1–5. https://doi.org/10.1029/2010GL045999
- Aleksandropoulou, V., Lazaridis, M. (2013). Development and application of a model (ExDoM) for calculating the respiratory tract dose and retention of particles under variable exposure conditions. *Air Quality, Atmosphere and Health*, 6(1), 13–26. https://doi.org/10.1007/s11869-010-0126-z
- Almeida-Silva, M., Pilou, M., Housiadas, C., Almeida, S. M. (2018). Internal dose of particles in the elderly modeling based on aerosol measurements. *Environmental Science and Pollution Research*, 25(24), 23645– 23656. https://doi.org/10.1007/s11356-018-2661-3
- Althausen, D., Engelmann, R., Baars, H., Heese, B., Ansmann, A., Müller, D., Komppula, M. (2009). Portable raman lidar pollyxt for automated profiling of aerosol backscatter, extinction, and depolarization. *Journal* of Atmospheric and Oceanic Technology, 26(11), 2366–2378. https://doi.org/10.1175/2009JTECHA1304.1
- Amato, F., Alastuey, A., Karanasiou, A., Lucarelli, F., Nava, S., Calzolai, G., Severi, M., Becagli, S., Gianelle, V. L., Colombi, C., Alves, C., Custódio, D., Nunes, T., Cerqueira, M., Pio, C., Eleftheriadis, K., Diapouli, E., Reche, C., Minguillón, M. C., Querol, X. (2016). AIRUSE-LIFE+: A harmonized PM speciation and source apportionment in five southern European cities. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *16*(5), 3289–3309. https://doi.org/10.5194/acp-16-3289-2016
- Amiridis, V., Giannakaki, E., Balis, D. S., Gerasopoulos, E., Pytharoulis, I., Zanis, P., Kazadzis, S., Melas, D., & Zerefos, C. (2010). Smoke injection heights from agricultural burning in Eastern Europe as seen by CALIPSO. Atmospheric Chemistry and Physics, 10(23), 11567–11576. https://doi.org/10.5194/acp-10-11567-2010
- Amiridis, V., Zerefos, C., Kazadzis, S., Gerasopoulos, E., Eleftheratos, K., Vrekoussis, M., Stohl, A., Mamouri, R. E., Kokkalis, P., Papayannis, A., Eleftheriadis, K., Diapouli, E., Keramitsoglou, I., Kontoes, C., Kotroni, V., Lagouvardos, K., Marinou, E., Giannakaki, E., Kostopoulou, E., Mihalopoulos, N. (2012). Impact of the 2009 Attica wild fires on the air quality in urban Athens. *Atmospheric Environment*, 46, 536–544. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2011.07.056
- Ansmann, A., Baars, H., Tesche, M., Müller, D., Althausen, D., Engelmann, R., Pauliquevis, T., & Artaxo, P. (2009). Dust and smoke transport from Africa to South America: Lidar profiling over Cape Verde and the Amazon rainforest. *Geophysical Research Letters*, 36(11), 2–6. https://doi.org/10.1029/2009GL037923
- Ansmann, A., Riebesell, M., & Weitkamp, C. (1990). Measurement of atmospheric aerosol extinction profiles with a Raman lidar. *Optics Letters*, *15*(13), 746. https://doi.org/10.1364/ol.15.000746

- Antiñolo, M., Willis, M. D., Zhou, S., & Abbatt, J. P. D. (2015). Connecting the oxidation of soot to its redox cycling abilities. *Nature Communications*, 6. https://doi.org/10.1038/ncomms7812
- Antonio Bravo-Aranda, J., Belegante, L., Freudenthaler, V., Alados-Arboledas, L., Nicolae, D., Granados-Munõz, M. J., Luis Guerrero-Rascado, J., Amodeo, A., D'Amico, G., Engelmann, R., Pappalardo, G., Kokkalis, P., Mamouri, R., Papayannis, A., Navas-Guzmán, F., José Olmo, F., Wandinger, U., Amato, F., & Haeffelin, M. (2016). Assessment of lidar depolarization uncertainty by means of a polarimetric lidar simulator. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(10), 4935–4953. https://doi.org/10.5194/amt-9-4935-2016
- Baars, H., Ansmann, A., Althausen, D., Engelmann, R., Heese, B., Mller, D., Artaxo, P., Paixao, M., Pauliquevis, T., & Souza, R. (2012). Aerosol profiling with lidar in the Amazon Basin during the wet and dry season. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 117(21), 1–16. https://doi.org/10.1029/2012JD018338
- Balis, D. S., Amiridis, V., Zerefos, C., Gerasopoulos, E., Andreae, M., Zanis, P., Kazantzidis, A., Kazadzis, S., & Papayannis, A. (2003). Raman lidar and sunphotometric measurements of aerosol optical properties over Thessaloniki, Greece during a biomass burning episode. *Atmospheric Environment*, 37(32), 4529–4538. https://doi.org/10.1016/S1352-2310(03)00581-8
- Basart, S., PéRez, C., Nickovic, S., Cuevas, E., and Baldasano, J. M. (2012). Development and evaluation of the BSC-DREAM8b dust regional model over northern Africa, the mediterranean and the middle east. *Tellus, Series B: Chemical and Physical Meteorology*, 64(1), 1–23. https://doi.org/10.3402/tellusb.v64i0.18539
- Bates, J. T., Fang, T., Verma, V., Zeng, L., Weber, R. J., Tolbert, P. E., Abrams, J. Y., Sarnat, S. E., Klein, M., Mulholland, J. A., & Russell, A. G. (2019). Review of Acellular Assays of Ambient Particulate Matter Oxidative Potential: Methods and Relationships with Composition, Sources, and Health Effects [Review-article]. *Environmental Science and Technology*, 53(8), 4003–4019. https://doi.org/10.1021/acs.est.8b03430
- Belegante, L., Antonio Bravo-Aranda, J., Freudenthaler, V., Nicolae, D., Nemuc, A., Ene, D., Alados-Arboledas, L., Amodeo, A., Pappalardo, G., D'Amico, G., Amato, F., Engelmann, R., Baars, H., Wandinger, U., Papayannis, A., Kokkalis, P., & Pereira, S. N. (2018). Experimental techniques for the calibration of lidar depolarization channels in EARLINET. *Atmospheric Measurement Techniques*, *11*(2), 1119–1141. https://doi.org/10.5194/amt-11-1119-2018
- Biele, J., Beyerle, G., & Baumgarten, G. (2000). Polarization lidar : Corrections of instrumental effects. *Optics Express*, 7(12), 427–435. https://doi.org/10.1364/OE.7.000427
- Binietoglou, I., Basart, S., Alados-Arboledas, L., Amiridis, V., Argyrouli, A., Baars, H., Baldasano, J. M., Balis, D., Belegante, L., Bravo-Aranda, J. A., Burlizzi, P., Carrasco, V., Chaikovsky, A., Comerón, A., D'Amico, G., Filioglou, M., Granados-Muñoz, M. J., Guerrero-Rascado, J. L., Ilic, L., Wagner, J. (2015). A methodology for investigating dust model performance using synergistic EARLINET/AERONET dust concentration retrievals. *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*, 8(4), 3605–3666. https://doi.org/10.5194/amtd-8-3605-2015
- Böckmann, C. (2001). Hybrid regularization method for the ill-posed inversion of multiwavelength lidar data in the retrieval of aerosol size distributions. *Applied Optics*, 40(9), 1329. https://doi.org/10.1364/ao.40.001329
- Brioude, J., Arnold, D., Stohl, A., Cassiani, M., Morton, D., Seibert, P., Angevine, W., Evan, S., Dingwell, A., Fast, J. D., Easter, R. C., Pisso, I., Burkhart, J., & Wotawa, G. (2013). The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART-WRF version 3.1. *Geoscientific Model Development*, 6(6), 1889–1904. https://doi.org/10.5194/gmd-6-1889-2013

- Burton, S. P., Ferrare, R. A., Hostetler, C. A., Hair, J. W., Rogers, R. R., Obland, M. D., Butler, C. F., Cook, A. L., Harper, D. B., & Froyd, K. D. (2012). Aerosol classification using airborne High Spectral Resolution Lidar measurements-methodology and examples. *Atmospheric Measurement Techniques*, 5(1), 73–98. https://doi.org/10.5194/amt-5-73-2012
- Burton, S. P., Ferrare, R. A., Vaughan, M. A., Omar, A. H., Rogers, R. R., Hostetler, C. A., & Hair, J. W. (2013). Aerosol classification from airborne HSRL and comparisons with the CALIPSO vertical feature mask. *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*, 6(1), 1815–1858. https://doi.org/10.5194/amtd-6-1815-2013
- Burton, S. P., Hair, J. W., Kahnert, M., Ferrare, R. A., Hostetler, C. A., Cook, A. L., Harper, D. B., Berkoff, T. A., Seaman, S. T., Collins, J. E., Fenn, M. A., & Rogers, R. R. (2015). Observations of the spectral dependence of linear particle depolarization ratio of aerosols using NASA Langley airborne High Spectral Resolution Lidar. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(23), 13453–13473. https://doi.org/10.5194/acp-15-13453-2015
- Cattrall, C., Reagan, J., Thome, K., & Dubovik, O. (2005). Variability of aerosol and spectral lidar and backscatter and extinction ratios of key aerosol types derived from selected Aerosol Robotic Network locations. *Journal of Geophysical Research D: Atmospheres*, *110*(10), 1–13. https://doi.org/10.1029/2004JD005124
- Chalvatzaki, E., Chatoutsidou, S. E., Mammi-Galani, E., Almeida, S. M., Gini, M. I., Eleftheriadis, K., Diapouli, E., & Lazaridis, M. (2018). Estimation of the personal deposited dose of particulate matter and particlebound metals using data from selected European cities. *Atmosphere*, 9(7), 18–20. https://doi.org/10.3390/atmos9070248
- Chalvatzaki, E., & Lazaridis, M. (2015). Development and application of a dosimetry model (ExDoM2) for calculating internal dose of specific particle-bound metals in the human body. *Inhalation Toxicology*, 27(6), 308–320. https://doi.org/10.3109/08958378.2015.1046201
- Chemyakin, E., Müller, D., Burton, S., Kolgotin, A., Hostetler, C., & Ferrare, R. (2014). Arrange and average algorithm for the retrieval of aerosol parameters from multiwavelength high-spectral-resolution lidar/Raman lidar data. *Applied Optics*, *53*(31), 7252. https://doi.org/10.1364/ao.53.007252
- Chirizzi, D., Cesari, D., Guascito, M. R., Dinoi, A., Giotta, L., Donateo, A., & Contini, D. (2017). Influence of Saharan dust outbreaks and carbon content on oxidative potential of water-soluble fractions of PM2.5 and PM10. Atmospheric Environment, 163, 1–8. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.05.021
- Cho, A. K., Sioutas, C., Miguel, A. H., Kumagai, Y., Schmitz, D. A., Singh, M., Eiguren-Fernandez, A., & Froines, J. R. (2005). Redox activity of airborne particulate matter at different sites in the Los Angeles Basin. *Environmental Research*, 99(1), 40–47. https://doi.org/10.1016/j.envres.2005.01.003
- Choi, J. Il, & Kim, C. S. (2007). Mathematical analysis of particle deposition in human lungs: An improved single path transport model. *Inhalation Toxicology*, *19*(11), 925–939. https://doi.org/10.1080/08958370701513014
- Clough, S. A. (1986). AFGL Atmospheric Constituent Profiles (0.120km) Atmospheric Radiation View project Eric Shettle. https://www.researchgate.net/publication/235054307
- D'Amico, G., Amodeo, A., Baars, H., Binietoglou, I., Freudenthaler, V., Mattis, I., Wandinger, U., & Pappalardo, G. (2015). EARLINET Single Calculus Chain-overview on methodology and strategy. *Atmospheric Measurement Techniques*, 8(11), 4891–4916. https://doi.org/10.5194/amt-8-4891-2015
- D'Amico, G., Amodeo, A., Mattis, I., Freudenthaler, V., & Pappalardo, G. (2016). EARLINET Single Calculus Chain-technical andndash; Part 1: Pre-processing of raw lidar data. *Atmospheric Measurement Techniques*,

9(2), 491-507. https://doi.org/10.5194/amt-9-491-2016

- Dawson, K. W., Meskhidze, N., Josset, D., & Gassó, S. (2015). Spaceborne observations of the lidar ratio of marine aerosols. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(6), 3241–3255. https://doi.org/10.5194/acp-15-3241-2015
- De Rosa, Benedetto, Francesco Amato, Aldo Amodeo, Giuseppe D'Amico, Claudio Dema, Alfredo Falconieri, Aldo Giunta, Pilar Gumà-Claramunt, Anna Kampouri, Stavros Solomos, Michail Mytilinaios, Nikolaos Papagiannopoulos, Donato Summa, Igor Veselovskii, and Lucia Mona. (2022). Characterization of Extremely Fresh Biomass Burning Aerosol by Means of Lidar Observations. *Remote Sensing*, 14(19), 4984. https://doi.org/10.3390/rs14194984
- Dhakal, S. (2002). The Urban Heat Environment and Urban Sustainability. *Future Cities: Dynamics and Sustainability*, 1. https://doi.org/10.1007/978-94-010-0365-0\_8
- Diapouli, E., Manousakas, M. I., Vratolis, S., Vasilatou, V., Pateraki, S., Bairachtari, K. A., Querol, X., Amato, F., Alastuey, A., Karanasiou, A. A., Lucarelli, F., Nava, S., Calzolai, G., Gianelle, V. L., Colombi, C., Alves, C., Custódio, D., Pio, C., Spyrou, C., Eleftheriadis, K. (2017). AIRUSE-LIFE +: Estimation of natural source contributions to urban ambient air PM10 and PM2. 5 concentrations in southern Europe Implications to compliance with limit values. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *17*(5), 3673–3685. https://doi.org/10.5194/acp-17-3673-2017
- Dimitriou, K., Bougiatioti, A., Ramonet, M., Pierros, F., Michalopoulos, P., Liakakou, E., Solomos, S., Quehe, P. Y., Delmotte, M., Gerasopoulos, E., Kanakidou, M., & Mihalopoulos, N. (2021). Greenhouse gases (CO2 and CH4) at an urban background site in Athens, Greece: Levels, sources and impact of atmospheric circulation. *Atmospheric Environment*, 253(November 2020), 118372. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2021.118372
- Eleftheriadis, K., Gini, M. I., Diapouli, E., Vratolis, S., Vasilatou, V., Fetfatzis, P., & Manousakas, M. I. (2021). Aerosol microphysics and chemistry reveal the COVID19 lockdown impact on urban air quality. *Scientific Reports*, *11*(1), 1–11. https://doi.org/10.1038/s41598-021-93650-6
- Emde, C., Buras-Schnell, R., Kylling, A., Mayer, B., Gasteiger, J., Hamann, U., Kylling, J., Richter, B., Pause, C., Dowling, T., & Bugliaro, L. (2016). The Libradtran software package for radiative transfer calculations (version 2.0.1). *Geoscientific Model Development*, 9(5), 1647–1672. https://doi.org/10.5194/gmd-9-1647-2016
- Engelmann, R., Kanitz, T., Baars, H., Heese, B., Althausen, D., Skupin, A., Wandinger, U., Komppula, M., Stachlewska, I. S., Amiridis, V., Marinou, E., Mattis, I., Linné, H., & Ansmann, A. (2016). The automated multiwavelength Raman polarization and water-vapor lidar PollyXT: The neXT generation. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(4), 1767–1784. https://doi.org/10.5194/amt-9-1767-2016
- Fang, T., Verma, V., Guo, H., King, L. E., Edgerton, E. S., & Weber, R. J. (2015). A semi-automated system for quantifying the oxidative potential of ambient particles in aqueous extracts using the dithiothreitol (DTT) assay: Results from the Southeastern Center for Air Pollution and Epidemiology (SCAPE). *Atmospheric Measurement Techniques*, 8(1), 471–482. https://doi.org/10.5194/amt-8-471-2015
- Fitzgerald, J. W. (1991). Marine aerosols: A review. Atmospheric Environment Part A, General Topics, 25(3–4), 533–545. https://doi.org/10.1016/0960-1686(91)90050-H
- Freudenthaler, V. (2016). About the effects of polarising optics on lidar signals and the  $\Delta 90$  calibration. Atmospheric Measurement Techniques, 9(9), 4181–4255. https://doi.org/10.5194/amt-9-4181-2016
- Freudenthaler, V., Esselborn, M., Wiegner, M., Heese, B., Tesche, M., Ansmann, A., Müller, D., Althausen, D., Wirth, M., Fix, A., Ehret, G., Knippertz, P., Toledano, C., Gasteiger, J., Garhammer, M., & Seefeldner, M. 172

(2009). Depolarization ratio profiling at several wavelengths in pure Saharan dust during SAMUM 2006. *Chemical and Physical Meteorology*, *61*(1), 165–179. https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2008.00396.x

- Fu Q. and Liou K. N. (1992). On the Correlated k-Distribution Method for Radiative Transfer in Nonhomogeneous Atmospheres. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 49(22), 2139-2156. https://doi.org/10.1175/1520-0469(1992)049<2139:OTCDMF>2.0.CO;2
- Georgoulias, A. K., Van Der, R. A. J., Stammes, P., Folkert Boersma, K., & Eskes, H. J. (2019). Trends and trend reversal detection in 2 decades of tropospheric NO2 satellite observations. *Atmospheric Chemistry* and Physics, 19(9), 6269–6294. https://doi.org/10.5194/acp-19-6269-2019
- Giannakaki, E., Balis, D. S., Amiridis, V., & Zerefos, C. (2010). Optical properties of different aerosol types: Seven years of combined Raman-elastic backscatter lidar measurements in Thessaloniki, Greece. *Atmospheric Measurement Techniques*, 3(3), 569–578. https://doi.org/10.5194/amt-3-569-2010
- Giannakaki, E., Van Zyl, P. G., Müller, D., Balis, D., & Komppula, M. (2016). Optical and microphysical characterization of aerosol layers over South Africa by means of multi-wavelength depolarization and Raman lidar measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(13), 8109–8123. https://doi.org/10.5194/acp-16-8109-2016
- Giglio, L., Descloitres, J., Justice, C. O., & Kaufman, Y. J. (2003). An enhanced contextual fire detection algorithm for MODIS. *Remote Sensing of Environment*, 87(2–3), 273–282. https://doi.org/10.1016/S0034-4257(03)00184-6
- Gini, M., Manousakas, M., Karydas, A. G., & Eleftheriadis, K. (2022). Mass size distributions, composition and dose estimates of particulate matter in Saharan dust outbreaks. *Environmental Pollution*, 298(December 2021), 118768. https://doi.org/10.1016/j.envpol.2021.118768
- Groß, S., Esselborn, M., Weinzierl, B., Wirth, M., Fix, A., & Petzold, A. (2013). Aerosol classification by airborne high spectral resolution lidar observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(5), 2487– 2505. https://doi.org/10.5194/acp-13-2487-2013
- Groß, S., Freudenthaler, V., Schepanski, K., Toledano, C., Schäfler, A., Ansmann, A., & Weinzierl, B. (2015). Optical properties of long-range transported Saharan dust over Barbados as measured by dual-wavelength depolarization Raman lidar measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(19), 11067–11080. https://doi.org/10.5194/acp-15-11067-2015
- Groß, S., Tesche, M., Freudenthaler, V., Toledano, C., Wiegner, M., Ansmann, A., Althausen, D., & 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, Series B: Chemical and Physical Meteorology*, 63(4), 706–724. https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2011.00556.x
- Haarig, M., Ansmann, A., Baars, H., Jimenez, C., Veselovskii, I., Engelmann, R., & Althausen, D. (2018). Extreme levels of Canadian wildfire smoke in the stratosphere over central Europe – Part 2: Lidar study of depolarization and lidar ratios at 355, 532, and 1064 nm and of microphysical properties. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, August 2017*, 1–22. https://doi.org/10.5194/acp-2018-358
- Hamill, P., Piedra, P., & Giordano, M. (2020). Simulated polarization as a signature of aerosol type. Atmospheric Environment, 224(January), 117348. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2020.117348
- Hinds, W. C. (2002). Aerosol technology. *Packaging Magazine*, 5(20), 29. https://doi.org/10.1016/0048-9697(83)90099-2
- Ho, S. P., Peng, L., Anthes, R. A., Kuo, Y. H., & Lin, H. C. (2015). Marine boundary layer heights and their

longitudinal, diurnal, and interseasonal variability in the southeastern Pacific using COSMIC, CALIOP, and radiosonde data. *Journal of Climate*, 28(7), 2856–2872. https://doi.org/10.1175/JCLI-D-14-00238.1

- Hofmann, W. (1982). Mathematical model for the postnatal growth of the human lung. *Respiration Physiology*, 49(1), 115–129. https://doi.org/10.1016/0034-5687(82)90106-2
- Hofmann, W. (2011). Modelling inhaled particle deposition in the human lung-A review. Journal of Aerosol Science, 42(10), 693–724. https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2011.05.007
- Jabłoństski, A. (1933). Efficiency of anti-stokes fluorescence in dyes. *Nature*, 131(3319), 839-840. https://doi.org/10.1038/131839b0
- Jaenicke, R. (1993). Tropospheric Aerosols. International Geophysics 54(C). https://doi.org/10.1016/S0074-6142(08)60210-7
- Janhall, S., Andreae, M. O., & Pöschl, U. (2010). Biomass burning aerosol emissions from vegetation fires: Particle number and mass emission factors and size distributions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(3), 1427–1439. https://doi.org/10.5194/acp-10-1427-2010
- Janicka, L., Stachlewska, I. S., Veselovskii, I., & Baars, H. (2017). Temporal variations in optical and microphysical properties of mineral dust and biomass burning aerosol derived from daytime Raman lidar observations over Warsaw, Poland. *Atmospheric Environment*, 169(July 2013), 162–174. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.09.022
- Janjic, Z. I., Gerrity, J., & Nickovic, S. (2001). An alternative approach to nonhydrostatic modeling. *Monthly Weather Review*, *129*(5), 1164–1178. https://doi.org/10.1175/1520-0493(2001)129<1164:AAATNM>2.0.CO;2
- Justice, C. O., Giglio, L., Korontzi, S., Owens, J., Morisette, J. T., Roy, D., Descloitres, J., Alleaume, S., Petitcolin, F., & Kaufman, Y. (2002). The MODIS fire products. *Remote Sensing of Environment*, 83(1– 2), 244–262. https://doi.org/10.1016/S0034-4257(02)00076-7
- Kato, S., Ackerman, T. P., Mather, J. H., & Clothiaux, E. E. (1999). The k-distribution method and correlated-k approximation for a shortwave radiative transfer model. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 62(1), 109–121. https://doi.org/10.1016/S0022-4073(98)00075-2
- Kaufman, Y. J., Koren, I., Remer, L. A., Tanré, D., Ginoux, P., & Fan, S. (2005). Dust transport and deposition observed from the Terra-Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) spacecraft over the Atlantic Ocean. Journal of Geophysical Research D: Atmospheres, 110(10), 1–16. https://doi.org/10.1029/2003JD004436
- Kim, M. H., Omar, A. H., Tackett, J. L., Vaughan, M. A., Winker, D. M., Trepte, C. R., Hu, Y., Liu, Z., Poole, L. R., Pitts, M. C., Kar, J., & Magill, B. E. (2018). The CALIPSO version 4 automated aerosol classification and lidar ratio selection algorithm. *Atmospheric Measurement Techniques*, 11(11), 6107–6135. https://doi.org/10.5194/amt-11-6107-2018
- Klett, J. D. (1981). Stable analytical inversion solution for processing lidar returns. *Applied Optics*, 20(2), 211. https://doi.org/10.1364/ao.20.000211
- Klett, J. D. (1985). Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios. *Applied Optics*, 24(11), 1638. https://doi.org/10.1364/ao.24.001638
- Koblinger, L., & Hofmann, W. (1990). Monte Carlo modeling of aerosol deposition in human lungs. Part I: Simulation of particle transport in a stochastic lung structure. *Journal of Aerosol Science*, 21(5), 661–674. https://doi.org/10.1016/0021-8502(90)90121-D

- Koepke, P., Gasteiger, J., & Hess, M. (2015). Technical Note: Optical properties of desert aerosol with nonspherical mineral particles: Data incorporated to OPAC. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(10), 5947–5956. https://doi.org/10.5194/acp-15-5947-2015
- Kokkalis, P., Soupiona, O., Papanikolaou, C. A., Foskinis, R., Mylonaki, M., Solomos, S., Vratolis, S., Vasilatou, V., Kralli, E., Anagnou, D., & Papayannis, A. (2021). Radiative effect and mixing processes of a long-lasting dust event over athens, greece, during the COVID-19 period. *Atmosphere*, 12(3), 1–26. https://doi.org/10.3390/atmos12030318
- Leskinen, A., Portin, H., Komppula, M., Miettinen, P., Arola, A., Lihavainen, H., Hatakka, J., Laaksonen, A., & Lehtinen, K. E. J. (2009). Overview of the research activities and results at Puijo semi-urban measurement station. *Boreal Environment Research*, *14*(4), 576–590.
- Levin, E. J. T., McMeeking, G. R., Carrico, C. M., Mack, L. E., Kreidenweis, S. M., Wold, C. E., Moosmüller, H., Arnott, W. P., Hao, W. M., Collett, J. L., & Malm, W. C. (2010). Biomass burning smoke aerosol properties measured during Fire Laboratory at Missoula Experiments (FLAME). *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 115(18). https://doi.org/10.1029/2009JD013601
- Liméry, A., Cézard, N., Fleury, D., Goular, D., Planchat, C., Bertrand, J., & Hauchecorne, A. (2017). Raman lidar for hydrogen gas concentration monitoring and future radioactive waste management. *Optics Express*, 25(24), 30636. https://doi.org/10.1364/oe.25.030636
- Madonna, F., Amodeo, A., Boselli, A., Cornacchia, C., Cuomo, V., D'Amico, G., Giunta, A., Mona, L., & Pappalardo, G. (2011). CIAO: The CNR-IMAA advanced observatory for atmospheric research. *Atmospheric Measurement Techniques*, 4(6), 1191–1208. https://doi.org/10.5194/amt-4-1191-2011
- Mahowald, N., Albani, S., Kok, J. F., Engelstaeder, S., Scanza, R., Ward, D. S., & Flanner, M. G. (2014). The size distribution of desert dust aerosols and its impact on the Earth system. *Aeolian Research*, 15, 53–71. https://doi.org/10.1016/j.aeolia.2013.09.002
- Mamouri, R. E., Papayannis, A., Amiridis, V., Müller, D., Kokkalis, P., Rapsomanikis, S., Karageorgos, E. T., Tsaknakis, G., Nenes, A., Kazadzis, S., and Remoundaki, E. (2012). Multi-wavelength Raman lidar, sun photometric and aircraft measurements in combination with inversion models for the estimation of the aerosol optical and physico-chemical properties over Athens, Greece. *Atmospheric Measurement Techniques*, 5, 1793–1808, https://doi.org/10.5194/amt-5-1793-2012, 2012
- Mantas, E., Remoundaki, E., Halari, I., Kassomenos, P., Theodosi, C., Hatzikioseyian, A., Mihalopoulos, N. (2014). Mass closure and source apportionment of PM2.5 by Positive Matrix Factorization analysis in urban Mediterranean environment. *Atmospheric Environment*, 94, 154–163. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.05.002
- Marenco, F., Johnson, B., Turnbull, K., Newman, S., Haywood, J., Webster, H., Ricketts, H. (2011). Airborne lidar observations of the 2010 Eyjafjallajkull volcanic ash plume. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 116(21), 1–15. https://doi.org/10.1029/2011JD016396
- Maroufidis, I., Soupiona, O., Lentaris, G., Mylonaki, M., Soudris, D., Papayannis, A. (2020). Detection and segmentation of aerosol layers and clouds using lidar measurements. *EPJ Web Conferences* (2020)
- Mattis, I., D'Amico, G., Baars, H., Amodeo, A., Madonna, F., & Iarlori, M. (2016). EARLINET Single Calculus Chain - Technical - Part 2.: Calculation of optical products. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(7), 3009–3029. https://doi.org/10.5194/amt-9-3009-2016
- Mattis, I., Müller, D., Ansmann, A., Wandinger, U., Preißler, J., Seifert, P., and Tesche, M. (2008). Ten years of multiwavelength Raman lidar observations of free-tropospheric aerosol layers over central Europe: Geometrical properties and annual cycle. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 113(20), 1–19.

https://doi.org/10.1029/2007JD009636

- Mayer, B., & Kylling, A. (2005). Technical note: The Libradtran software package for radiative transfer calculations - Description and examples of use. In *Atmospheric Chemistry and Physics* 5(7), 1855–1877. https://doi.org/10.5194/acp-5-1855-2005
- McDowell, J. C., The edge of space: Revisiting the Karman Line (2018). *Acta Astronautica*, 151, 668-677. https://doi.org/10.1016/j.actaastro.2018.07.003.
- Miller, F. J., Asgharian, B., Schroeter, J. D., & Price, O. (2016). Improvements and additions to the Multiple Path Particle Dosimetry model. *Journal of Aerosol Science*, 99, 14–26. https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2016.01.018
- Mishchenko, M. I., Travis, L. D., & Mackowski, D. W. (1996). T-matrix computations of light scattering by nonspherical particles: A review. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 55(5), 535–575. https://doi.org/10.1016/0022-4073(96)00002-7
- Mitsakou, C., Helmis, C., & Housiadas, C. (2005). Eulerian modelling of lung deposition with sectional representation of aerosol dynamics. *Journal of Aerosol Science*, *36*(1), 75–94. https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2004.08.008
- Mitsakou, C., Housiadas, C., Eleftheriadis, K., Vratolis, S., Helmis, C., & Asimakopoulos, D. (2007). Lung deposition of fine and ultrafine particles outdoors and indoors during a cooking event and a no activity period. *Indoor Air*, 17(2), 143–152. https://doi.org/10.1111/j.1600-0668.2006.00464.x
- Müller, D., Ansmann, A., Mattis, I., Tesche, M., Wandinger, U., Althausen, D., & Pisani, G. (2007). Aerosoltype-dependent lidar ratios observed with Raman lidar. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 112(16), 1–11. https://doi.org/10.1029/2006JD008292
- Müller, D., Mattis, I., Wandinger, U., Ansmann, A., Althausen, D., & Stohl, A. (2005). Raman lidar observations of aged Siberian and Canadian forest fire smoke in the free troposphere over Germany in 2003: Microphysical particle characterization. *Journal of Geophysical Research D: Atmospheres*, 110(17), 75– 90. https://doi.org/10.1029/2004JD005756
- Müller, D., Wandinger, U., & Ansmann, A. (1999). Microphysical particle parameters from extinction and backscatter lidar data by inversion with regularization: theory. *Applied Optics*, *38*(12), 2346. https://doi.org/10.1364/ao.38.002346
- Murayama, T., Müller, D., Wada, K., Shimizu, A., Sekiguchi, M., & Tsukamoto, T. (2004). Characterization of Asian dust and Siberian smoke with multi-wavelength Raman lidar over Tokyo, Japan in spring 2003. *Geophysical Research Letters*, 31(23), 1–5. https://doi.org/10.1029/2004GL021105
- Mylonaki, M., Papanikolaou, Giannakaki, E., C.-A., Kokkalis, P., Soupiona, O., Foskinis, R., Papayannis, A.: Regional Direct Radiative Effect and Heating Rate of Forest Fire and Mixtures: the case of Athens, Greece, Sci. Total Environ. 2023a, (in preparation).
- Mylonaki, M., Gini, M., Georgopoulou, M., Pilou, M., Chalvatzaki, E., Solomos, Diapouli, E., S., Lazaridis M., Giannakaki, E., Pandis, S., Nenes, A., Eleftheriadis, K., Papayannis, A.: Wildfire and desert dust aerosol oxidative potential, exposure and dose in the human respiratory tract, Sci. Total Environ. 2023b, (in preparation)
- Mylonaki, M., Giannakaki, E., Papayannis, A., Papanikolaou, C. A., Komppula, M., Nicolae, D., Papagiannopoulos, N., Amodeo, A., Baars, H., & Soupiona, O. (2021a). Aerosol type classification analysis using EARLINET multiwavelength and depolarization lidar observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *21*(3), 2211–2227. https://doi.org/10.5194/acp-21-2211-2021

- Mylonaki, M., Papayannis, A., Anagnou, D., Veselovskii, I., Papanikolaou, C. A., Kokkalis, P., Soupiona, O., Foskinis, R., Gidarakou, M., & Kralli, E. (2021b). Optical and microphysical properties of aged biomass burning aerosols and mixtures, based on 9-year multiwavelength raman lidar observations in athens, greece. *Remote Sensing*, 13(19). https://doi.org/10.3390/rs13193877
- Mylonaki, M., Papayannis, A., Papanikolaou, C. A., Foskinis, R., Soupiona, O., Maroufidis, G., Anagnou, D., & Kralli, E. (2021c). Tropospheric vertical profiling of the aerosol backscatter coefficient and the particle linear depolarization ratio for different aerosol mixtures during the PANACEA campaign in July 2019 at Volos, Greece. *Atmospheric Environment*, 247(December 2020), 118184. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2021.118184
- Nemuc, A., Vasilescu, J., Talianu, C., Belegante, L., & Nicolae, D. (2013). Assessment of aerosol's mass concentrations from measured linear particle depolarization ratio (vertically resolved) and simulations. *Atmospheric Measurement Techniques*, 6(11), 3243–3255. https://doi.org/10.5194/amt-6-3243-2013
- Nickovic, S., Cvetkovic, B., Madonna, F., Rosoldi, M., Pejanovic, G., Petkovic, S., & Nikolic, J. (2016). Cloud ice caused by atmospheric mineral dust-Part 1: Parameterization of ice nuclei concentration in the NMME-DREAM model. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(17), 11367–11378. https://doi.org/10.5194/acp-16-11367-2016
- Nickovic, S., Kallos, G., Papadopoulos, A., & Kakaliagou, O. (2001). A model for prediction of desert dust cycle in the atmosphere. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 106(D16), 18113–18129. https://doi.org/10.1029/2000JD900794
- Nicolae, D., Nemuc, A., Müller, D., Talianu, C., Vasilescu, J., Belegante, L., & Kolgotin, A. (2013). Characterization of fresh and aged biomass burning events using multiwavelength Raman lidar and mass spectrometry. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, *118*(7), 2956–2965. https://doi.org/10.1002/jgrd.50324
- Nicolae, D., Talianu, C., Ciuciu, J., Ciobanu, M., & Babin, V. (2006). LIDAR monitoring of aerosols loading over Bucharest. *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials*, 8(1), 238–242.
- Nicolae, D., Talianu, C., Vasilescu, J., Nicolae, V., & Stachlewska, I. S. (2018). Strengths and limitations of the NATALI code for aerosol typing from multiwavelength Raman lidar observations. *EPJ Web of Conferences*, 176, 1–4. https://doi.org/10.1051/epjconf/201817605005
- Nicolae, D., Vasilescu, J., Talianu, C., Binietoglou, I., Nicolae, V., Andrei, S., & Antonescu, B. (2018). A Neural Network Aerosol Typing Algorithm Based on Lidar Data. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 2016, 1–44. https://doi.org/10.5194/acp-2018-492
- Obregón, M. A., Costa, M. J., Silva, A. M., & Serrano, A. (2017). Thirteen years of aerosol radiative forcing in southwestern Iberian Peninsula. *Aerosol and Air Quality Research*, 17(10), 2509–2521. https://doi.org/10.4209/aaqr.2017.05.0159
- Omar, A. H., Winker, D. M., Kittaka, C., Vaughan, M. A., Liu, Z., Hu, Y., Trepte, C. R., Rogers, R. R., Ferrare, R. A., Lee, K. P., Kuehn, R. E., & Hostetler, C. A. (2009). The CALIPSO automated aerosol classification and lidar ratio selection algorithm. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 26(10), 1994–2014. https://doi.org/10.1175/2009JTECHA1231.1
- Ortiz-Amezcua, P., Luis Guerrero-Rascado, J., Granados-Munõz, M. J., Benavent-Oltra, J. A., Böckmann, C., Samaras, S., Stachlewska, I. S., Janicka, L., Baars, H., Bohlmann, S., & Alados-Arboledas, L. (2017). Microphysical characterization of long-range transported biomass burning particles from North America at three EARLINET stations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(9), 5931–5946. https://doi.org/10.5194/acp-17-5931-2017

- Pant, P., Baker, S. J., Shukla, A., Maikawa, C., Godri Pollitt, K. J., & Harrison, R. M. (2015). The PM10 fraction of road dust in the UK and India: Characterization, source profiles and oxidative potential. *Science of the Total Environment*, 530–531, 445–452. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2015.05.084
- Panteliadis, P., Hafkenscheid, T., Cary, B., Diapouli, E., Fischer, A., Favez, O., Quincey, P., Viana, M., Hitzenberger, R., Vecchi, R., Saraga, D., Sciare, J., Jaffrezo, J. L., John, A., Schwarz, J., Giannoni, M., Novak, J., Karanasiou, A., Fermo, P., & Maenhaut, W. (2015). ECOC comparison exercise with identical thermal protocols after temperature offset correction - Instrument diagnostics by in-depth evaluation of operational parameters. *Atmospheric Measurement Techniques*, 8(2), 779–792. https://doi.org/10.5194/amt-8-779-2015
- Papagiannopoulos, N., Mona, L., Alados-Arboledas, L., Amiridis, V., Baars, H., Binietoglou, I., Bortoli, D., D'Amico, G., Giunta, A., Luis Guerrero-Rascado, J., Schwarz, A., Pereira, S., Spinelli, N., Wandinger, U., Wang, X., & Pappalardo, G. (2016). CALIPSO climatological products: Evaluation and suggestions from EARLINET. Atmospheric Chemistry and Physics, 16(4), 2341–2357. https://doi.org/10.5194/acp-16-2341-2016
- Papagiannopoulos, N., Mona, L., Amodeo, A., D'Amico, G., Gumà Claramunt, P., Pappalardo, G., Alados-Arboledas, L., Luís Guerrero-Rascado, J., Amiridis, V., Kokkalis, P., Apituley, A., Baars, H., Schwarz, A., Wandinger, U., Binietoglou, I., Nicolae, D., Bortoli, D., Comerón, A., Rodríguez-Gómez, A., ... Wiegner, M. (2018). An automatic observation-based aerosol typing method for EARLINET. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(21), 15879–15901. https://doi.org/10.5194/acp-18-15879-2018
- Papanikolaou, C. A., Giannakaki, E., Papayannis, A., Mylonaki, M., & Soupiona, O. (2020). Canadian biomass burning aerosol properties modification during a long-ranged event on August 2018. Sensors, 20(18), 1– 19. https://doi.org/10.3390/s20185442
- Papanikolaou, C. A., Papayannis, A., Mylonaki, M., Foskinis, R., Kokkalis, P., Liakakou, E., Stavroulas, I., Soupiona, O., Hatzianastassiou, N., Gavrouzou, M., Kralli, E., & Anagnou, D. (2022). Vertical Profiling of Fresh Biomass Burning Aerosol Optical Properties over the Greek Urban City of Ioannina, during the PANACEA Winter Campaign. *Atmosphere*, 13(1). https://doi.org/10.3390/atmos13010094
- Papayannis, A., Amiridis, V., Mona, L., Tsaknakis, G., Balis, D., Bösenberg, J., Chaikovski, A., De Tomasi, F., Grigorov, I., Mattis, I., Mitev, V., Müller, D., Nickovic, S., Pérez, C., Pietruczuk, A., Pisani, G., Ravetta, F., Rizi, V., Sicard, M., Pappalardo, G. (2008). Systematic lidar observations of Saharan dust over Europe in the frame of EARLINET (2000-2002). *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, *113*(10), 1–17. https://doi.org/10.1029/2007JD009028
- Papayannis, A., Argyrouli, A., Bougiatioti, A., Remoundaki, E., Vratolis, S., Nenes, A., Solomos, S., Komppula, M., Giannakaki, E., Kalogiros, J., Banks, R., Eleftheriadis, K., Mantas, E., Diapouli, E., Tzanis, C. G., Kazadzis, S., Binietoglou, I., Labzovskii, L., Vande Hey, J., & Zerefos, C. S. (2017). From hygroscopic aerosols to cloud droplets: The HygrA-CD campaign in the Athens basin An overview. *Science of the Total Environment*, 574, 216–233. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.09.054
- Papayannis, A., Kokkalis, P., Mylonaki, M., Soupiona, R., Papanikolaou, C. A., & Foskinis, R. (2020). Recent upgrades of the EOLE and AIAS lidar systems of the National Technical University of Athens operating since 2000 in Athens, Greece. *EPJ Web of Conferences*, 247(02030), 4–7. https://doi.org/10.1051/epjconf/202023702030
- Papayannis, A., Mamouri, R. E., Amiridis, V., Giannakaki, E., Veselovskii, I., Kokkalis, P., Tsaknakis, G., Balis, D., Kristiansen, N. I., Stohl, A., Korenskiy, M., Allakhverdiev, K., Huseyinoglu, M. F., & Baykara, T. (2012). Optical properties and vertical extension of aged ash layers over the Eastern Mediterranean as observed by Raman lidars during the Eyjafjallajökull eruption in May 2010. *Atmospheric Environment*, 48, 56–65. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2011.08.037

- Papayannis, A., Mamouri, R. E., Amiridis, V., Remoundaki, E., Tsaknakis, G., Kokkalis, P., Veselovskii, I., Kolgotin, A., Nenes, A., & Fountoukis, C. (2012). Optical-microphysical properties of Saharan dust aerosols and composition relationship using a multi-wavelength Raman lidar, in situ sensors and modelling: A case study analysis. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(9), 4011–4032. https://doi.org/10.5194/acp-12-4011-2012
- 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., & Wiegner, M. (2014). EARLINET: Towards an advanced sustainable European aerosol lidar network. *Atmospheric Measurement Techniques*, 7(8), 2389–2409. https://doi.org/10.5194/amt-7-2389-2014
- Penning De Vries, M. J. M., Beirle, S., Hörmann, C., Kaiser, J. W., Stammes, P., Tilstra, L. G., Tuinder, O. N. E., & Wagner, T. (2015). A global aerosol classification algorithm incorporating multiple satellite data sets of aerosol and trace gas abundances. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(18), 10597–10618. https://doi.org/10.5194/acp-15-10597-2015
- Pérez, C., Haustein, K., Janjic, Z., Jorba, O., Huneeus, N., Baldasano, J. M., Black, T., Basart, S., Nickovic, S., Miller, R. L., Perlwitz, J. P., Schulz, M., & Thomson, M. (2011). Atmospheric dust modeling from meso to global scales with the online NMMB/BSC-Dust model – Part 1: Model description, annual simulations and evaluation. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(24), 13001–13027. https://doi.org/10.5194/acp-11-13001-2011
- Pilou, M., Mavrofrydi, O., Housiadas, C., Eleftheriadis, K., & Papazafiri, P. (2015). Computational modeling as part of alternative testing strategies in the respiratory and cardiovascular systems: Inhaled nanoparticle dose modeling based on representative aerosol measurements and corresponding toxicological analysis. *Nanotoxicology*, 9(S1), 106–115. https://doi.org/10.3109/17435390.2013.861527
- Pizzino G, Irrera N, Cucinotta M, Pallio G, Mannino F, Arcoraci V, Squadrito F, Altavilla D, Bitto A. (2017). Oxidative Stress: Harms and Benefits for Human Health. Oxidative Medicine and Cellular Longevity, 8416763. https://10.1155/2017/8416763
- Pöschl, U. (2005). Atmospheric aerosols: Composition, transformation, climate and health effects. Angewandte Chemie - International Edition, 44(46), 7520–7540. https://doi.org/10.1002/anie.200501122
- Pósfai, M., Anderson, J. R., Buseck, P. R., & Sievering, H. (1999). Soot and sulfate aerosol particles in the remote marine troposphere. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 104(D17), 21685–21693. https://doi.org/10.1029/1999JD900208
- Prospero, J. M., Charlson, R. J., Mohnen, V., Jaenicke, R., Delany, A. C., Moyers, J., Zoller, W., & Rahn, K. (1983). The atmospheric aerosol system: An overview. *Reviews of Geophysics*, 21(7), 1607–1629. https://doi.org/10.1029/RG021i007p01607
- Pryor, W. A., Cueto, R., & Squadrito, G. L. (2001). Role of Free Radicals in the Toxicity of Airborne Fine Particulate Matter - Chemical Research in Toxicology. *Chemical Research*, 1371–1377. http://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/tx010050x%5Cnpapers2://publication/uuid/F81A9318-8FA1-43EA-ADBE-BD5070390520
- Querol, X., Pérez, N., Reche, C., Ealo, M., Ripoll, A., Tur, J., Pandolfi, M., Pey, J., Salvador, P., Moreno, T., & Alastuey, A. (2019). African dust and air quality over Spain: Is it only dust that matters? *Science of the Total Environment*, 686, 737–752. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.05.349
- Reid, J. S., Eck, T. F., Christopher, S. A., Koppman, R., Dubovik, O., Eleuterio, D. P., Holben, B. N., Reid, E. A., & Zhang, J. (2005). A review of biomass burning emissions part III: Intensive optical properties of biomass burning particles. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(3), 827–849.

https://doi.org/10.5194/acp-5-827-2005

- Remoundaki, E., Papayannis, A., Kassomenos, P., Mantas, E., Kokkalis, P., & Tsezos, M. (2013). Influence of saharan dust transport events on PM2.5 concentrations and composition over Athens. *Water, Air, and Soil Pollution*, 224(1). https://doi.org/10.1007/s11270-012-1373-4
- Russell, P. B., Kacenelenbogen, M., Livingston, J. M., Hasekamp, O. P., Burton, S. P., Schuster, G. L., Johnson, M. S., Knobelspiesse, K. D., Redemann, J., Ramachandran, S., Holben, B., & Al, R. E. T. (2014). *Journal* of Geophysical Research : Atmospheres. 9838–9863. https://doi.org/10.1002/2013JD021411.Received
- Saffari, A., Hasheminassab, S., Shafer, M. M., Schauer, J. J., Chatila, T. A., & Sioutas, C. (2016). Nighttime aqueous-phase secondary organic aerosols in Los Angeles and its implication for fine particulate matter composition and oxidative potential. *Atmospheric Environment*, 133, 112–122. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.03.022
- Samaras, S., Nicolae, D., Böckmann, C., Vasilescu, J., Binietoglou, I., Labzovskii, L., Toanca, F., & Papayannis, A. (2015). Using Raman-lidar-based regularized microphysical retrievals and Aerosol Mass Spectrometer measurements for the characterization of biomass burning aerosols. *Journal of Computational Physics*, 299, 156–174. https://doi.org/10.1016/j.jcp.2015.06.045
- Sassen, K. (2003). Polarization in lidar: a review. *Polarization Science and Remote Sensing*, 5158, 151. https://doi.org/10.1117/12.507006
- Seinfeld, J. H., Bretherton, C., Carslaw, K. S., Coe, H., DeMott, P. J., Dunlea, E. J., Feingold, G., Ghan, S., Guenther, A. B., Kahn, R., Kraucunas, I., Kreidenweis, S. M., Molina, M. J., Nenes, A., Penner, J. E., Prather, K. A., Ramanathan, V., Ramaswamy, V., Rasch, P. J., Wood, R. (2016). Improving our fundamental understanding of the role of aerosol-cloud interactions in the climate system. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 113(21), 5781–5790. https://doi.org/10.1073/pnas.1514043113
- Seinfeld, J. H., Pandis, S. N., & Noone, K. (1998). Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change. *Physics Today* 51(10). https://doi.org/10.1063/1.882420
- Shettle, E. P. (1989). Comments on the use of lowtran in transmissioncalculations for sites with the ground elevated relative to sea level. *Applied Optics*, 28(8), 1451–1452. https://opg.optica.org/ao/abstract.cfm?URI=ao-28-8-1451
- Sicard, M., Barragan, R., Dulac, F., Alados-Arboledas, L., & Mallet, M. (2016). Aerosol optical, microphysical and radiative properties at regional background insular sites in the western Mediterranean. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(18), 12177–12203. https://doi.org/10.5194/acp-16-12177-2016
- Siomos, N., Fountoulakis, I., Natsis, A., Drosoglou, T., & Bais, A. (2020). Automated aerosol classification from spectral UV measurements using machine learning clustering. *Remote Sensing*, 12(6), 1–18. https://doi.org/10.3390/rs12060965
- Skamarock, W. C. ., Klemp, J. B., Dudhia, J. B., Gill, D. O., Barker, D. M., Duda, M. G., Huang, X.-Y. ., Wang, W., & Powers, J. G. (2021). A Description of the Advanced Research WRF Model Version 4.3. NCAR Technical Note, July, 1–165. https://doi.org/ 10.5065/1dfh-6p97
- Solomos, S., Amiridis, V., Zanis, P., Gerasopoulos, E., Sofiou, F. I., Herekakis, T., Brioude, J., Stohl, A., Kahn, R. A., & Kontoes, C. (2015). Smoke dispersion modeling over complex terrain using high resolution meteorological data and satellite observations - The FireHub platform. *Atmospheric Environment*, 119, 348–361. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.08.066

Solomos, S., Gialitaki, A., Marinou, E., Proestakis, E., Amiridis, V., Baars, H., Komppula, M., & Ansmann, A.
(2019). Modeling and remote sensing of an indirect Pyro-Cb formation and biomass transport from Portugal wildfires towards Europe. *Atmospheric Environment*, 206(March), 303–315. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.03.009

- Soupiona, O., Papayannis, A., Kokkalis, P., Foskinis, R., Sánchez Hernández, G., Ortiz-Amezcua, P., Mylonaki, M., Papanikolaou, C. A., Papagiannopoulos, N., Samaras, S., Groß, S., Mamouri, R. E., Alados-Arboledas, L., Amodeo, A., & Psiloglou, B. (2020a). EARLINET observations of Saharan dust intrusions over the northern Mediterranean region (2014-2017): Properties and impact on radiative forcing. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20(23), 15147–15166. https://doi.org/10.5194/acp-20-15147-2020
- Soupiona, O., Papayannis, A., Kokkalis, P., Foskinis, R., Sánchez Hernández, G., Ortiz-Amezcua, P., Mylonaki, M., Papanikolaou, C. A., Papagiannopoulos, N., Samaras, S., Groß, S., Mamouri, R. E., Alados-Arboledas, L., Amodeo, A., & Psiloglou, B. (2020b). EARLINET observations of Saharan dust intrusions over the northern Mediterranean region (2014-2017): Properties and impact on radiative forcing. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20(23), 15147–15166. https://doi.org/10.5194/acp-20-15147-2020
- Soupiona, O., Papayannis, A., Kokkalis, P., Mylonaki, M., Tsaknakis, G., Argyrouli, A., & Vratolis, S. (2018). Long-term systematic profiling of dust aerosol optical properties using the EOLE NTUA lidar system over Athens, Greece (2000–2016). *Atmospheric Environment*, 183. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2018.04.011
- Soupiona, O., Samaras, S., Ortiz-Amezcua, P., Böckmann, C., Papayannis, A., Moreira, G. A., Benavent-Oltra, J. A., Guerrero-Rascado, J. L., Bedoya-Velásquez, A. E., Olmo, F. J., Román, R., Kokkalis, P., Mylonaki, M., Alados-Arboledas, L., Papanikolaou, C. A., & Foskinis, R. (2019). Retrieval of optical and microphysical properties of transported Saharan dust over Athens and Granada based on multi-wavelength Raman lidar measurements: Study of the mixing processes. *Atmospheric Environment*, 214. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.116824
- Stamnes, K., Tsay, S.-C., Wiscombe, W., & Jayaweera, K. (1988). Numerically stable algorithm for discreteordinate-method radiative transfer in multiple scattering and emitting layered media. *Applied Optics*, 27(12), 2502. https://doi.org/10.1364/ao.27.002502
- Stein, A. F., Draxler, R. R., Rolph, G. D., Stunder, B. J. B., Cohen, M. D., & Ngan, F. (2015). Noaa's hysplit atmospheric transport and dispersion modeling system. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 96(12), 2059–2077. https://doi.org/10.1175/BAMS-D-14-00110.1
- Stohl, A., Forster, C., Frank, A., Seibert, P., & Wotawa, G. (2005). Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2. Atmospheric Chemistry and Physics, 5(9), 2461–2474. https://doi.org/10.5194/acp-5-2461-2005
- Vañó, E., Miller, C. J., Rehani, M. M., Kang, K., Rosenstein, M., Ortiz-López, P., Mattsson, S., Padovani, R., & Rogers, A. (2017). *Protection, International Commission on Radiological*, 44(1). www.icrp.org
- Vasilatou, K., Dirscherl, K., Iida, K., Sakurai, H., Horender, S., & Auderset, K. (2020). Calibration of optical particle counters: First comprehensive inter-comparison for particle sizes up to 5 μm and number concentrations up to 2 cm-3. *Metrologia*, *57*(2). https://doi.org/10.1088/1681-7575/ab5c84
- Verma, V., Ning, Z., Cho, A. K., Schauer, J. J., Shafer, M. M., & Sioutas, C. (2009). Redox activity of urban quasi-ultrafine particles from primary and secondary sources. *Atmospheric Environment*, 43(40), 6360– 6368. https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2009.09.019
- Veselovskii, I., Dubovik, O., Kolgotin, A., Korenskiy, M., Whiteman, D. N., Allakhverdiev, K., & Huseyinoglu, F. (2012). Linear estimation of particle bulk parameters from multi-wavelength lidar measurements. *Atmospheric Measurement Techniques*, 5(5), 1135–1145. https://doi.org/10.5194/amt-5-1135-2012

- Veselovskii, I., Kolgotin, A., Griaznov, V., Müller, D., Wandinger, U., & Whiteman, D. N. (2002). Inversion with regularization for the retrieval of tropospheric aerosol parameters from multiwavelength lidar sounding. *Applied Optics*, 41(18), 3685. https://doi.org/10.1364/ao.41.003685
- Veselovskii, I., N Whiteman, D., Korenskiy, M., Suvorina, A., Kolgotin, A., Lyapustin, A., Wang, Y., Chin, M., Bian, H., Kucsera, T. L., Pérez-Ramírez, D., & Holben, B. (2015). Characterization of forest fire smoke event near Washington, DC in summer 2013 with multi-wavelength lidar. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(4), 1647–1660. https://doi.org/10.5194/acp-15-1647-2015
- Vratolis, S., Fetfatzis, P., Argyrouli, A., Papayannis, A., Müller, D., Veselovskii, I., Bougiatioti, A., Nenes, A., Remoundaki, E., Diapouli, E., Manousakas, M., Mylonaki, M., & Eleftheriadis, K. (2018). A new method to retrieve the real part of the equivalent refractive index of atmospheric aerosols. *Journal of Aerosol Science*, 117. https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2017.12.013
- Wandinger, U., Müller, D., Böckmann, C., Althausen, D., Matthias, V., Bösenberg, J., Weiß, V., Fiebig, M., Wendisch, M., Stohl, A., & Ansmann, A. (2002). Optical and microphysical characterization of biomassburning and industrial-pollution aerosols from multiwavelength lidar and aircraft measurements. *Journal* of Geophysical Research Atmospheres, 107(21). https://doi.org/10.1029/2000JD000202
- Waterman, P. C. (1971). Symmetry, unitarity, and geometry in electromagnetic scattering. *Physical Review D*, 3(4), 825–839. https://doi.org/10.1103/PhysRevD.3.825
- Weitkamp, C. (2005). Lidar, Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere. *Springer*, 2005(102). https://doi.org/10.1007/b106786
- Wild, M., Folini, D., Hakuba, M. Z., Schär, C., Seneviratne, S. I., Kato, S., Rutan, D., Ammann, C., Wood, E. F., & König-Langlo, G. (2015). The energy balance over land and oceans: an assessment based on direct observations and CMIP5 climate models. *Climate Dynamics*, 44(11–12), 3393–3429. https://doi.org/10.1007/s00382-014-2430-z
- Winker, D. M., Vaughan, M. A., Omar, A., Hu, Y., Powell, K. A., Liu, Z., Hunt, W. H., & Young, S. A. (2009). Overview of the CALIPSO mission and CALIOP data processing algorithms. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 26(11), 2310–2323. https://doi.org/10.1175/2009JTECHA1281.1
- Wong, J. P. S., Tsagkaraki, M., Tsiodra, I., Mihalopoulos, N., Violaki, K., Kanakidou, M., Sciare, J., Nenes, A., & Weber, R. J. (2019). Effects of Atmospheric Processing on the Oxidative Potential of Biomass Burning Organic Aerosols. *Environmental Science and Technology*, 53(12), 6747–6756. https://doi.org/10.1021/acs.est.9b01034
- Wu, D., Hu, Y., Xu, K. M., Liu, Z., Smith, B., Omar, A. H., Chang, F. L., & McCormick, M. P. (2008). Deriving Marine-Boundary-Layer Lapse Rate from Collocated CALIPSO, MODIS, and AMSR-E Data to Study Global Low-Cloud Height Statistics. *IEEE Geoscience and Remote Sensing Letters*, 5(4), 649–652. https://doi.org/10.1109/LGRS.2008.2002024

# SCHOLARSHIPS AND AWARDS

During this Ph.D. Candidature, the following scholarships, and awards were obtained:

## Scholarships

Funding source	Location	Period
This research work was supported by the Hellenic Foundation for Research and Innovation (HFRI) under the HFRI Ph.D. Fellowship grant (Fellowship Number: 669).	Laser Remote Sensing Unit, Physics Department, School of Applied Mathematical and Physical Sciences, National Technical University of Athens	2019-2023

#### Awards

Award	Objective
Thomaeidio Award	Scientific publications of the year 2021

## **Participation in Research Projects**

Research Project	Objective
PANhellenic infrastructure for Atmospheric Composition and climatE change" (MIS 5021516) under the Action "Reinforcement of the Research and Innovation Infrastructure", funded by the Operational Program "Competitiveness, Entrepreneurship and Innovation" (NSRF 2014-2020) and co-financed by Greece and the European Union (European Regional Development Fund).	Junior Researcher/Lidar data analysis
EUROPEAN PROGRAMHORIZON2020"ACTRIS-2: Aerosols, Clouds and Trace gasesResearch Infrastructure", (Code 2211)	Junior Researcher/Lidar data analysis

# WORKSHOPS, MEETINGS, CONFERENCES

During this Ph.D. Candidature, the following workshops, meetings, and conferences were attended:

### Workshops/Schools

Workshop/School	Location/Date
Aerosol Remote Sensing (ARS-ARES) workshop	Virtual/July 2020
Actris-2 WP2 SCC Winter School	Potenza, Italy/December 2018

### Meetings

Location/Date
Virtual/every month, 2020-2022
Virtual/September 2020
Virtual/October 2020
Chania, Greece/June 2020
Darmstadt, Germany/April 2019
]

### Conferences

Location/Date
Metsovo, Greece/22-24 September 2022
Athens, Greece/4-9 September 2022
Big Sky, Montana, USA/26 June -1 July 2022
Granada, Spain/16-18 November 2021
Granada, Spain/18-20 November 2020
Heraklion, Greece/23-24 September 2019
Hefei, China/24-28 June 2019

## LIST OF PUBLICATIONS

Publications in International Peer review Journals

- 1. <u>Mylonaki, M</u>., Papanikolaou, Giannakaki, E., C.-A., Kokkalis, P., Soupiona, O., Foskinis, R., Papayannis, A.: Regional Direct Radiative Effect and Heating Rate of Forest Fire and Mixtures: the case of Athens, Greece, *Sci. Total Environ.* 2023a, (in preparation).
- <u>Mylonaki, M.,</u> Gini, M., Georgopoulou, M., Pilou, M., Chalvatzaki, E., Solomos, Diapouli, E., S., Lazaridis M., Giannakaki, E., Pandis, S., Nenes, A., Eleftheriadis, K., Papayannis, A.: Wildfire and desert dust aerosol oxidative potential, exposure and dose in the human respiratory tract, *Sci. Total Environ.* 2023b, (in preparation).
- Michailidis, K., Koukouli, M.-E., Balis, D., Veefkind, P., de Graaf, M., Mona, L., Papagianopoulos, N., Pappalardo, G., Tsikoudi, I., Amiridis, V., Marinou, E., Gialitaki, A., Mamouri, R.-E., Nisantzi, A., Bortoli, D., João Costa, M., Salgueiro, V., Papayannis, A., <u>Mylonaki, M.</u>, Alados-Arboledas, L., Romano, S., Perrone, M. R., and Baars, H.: Validation of the TROPOMI/S5P Aerosol Layer Height using EARLINET lidars, *Atmos. Chem. Phys. Discuss*. [preprint], https://doi.org/10.5194/acp-2022-412, (under review)
- Gkikas, A., Gialitaki, A., Binietoglou, I., Marinou, E., Tsichla, M., Siomos, N., Paschou, P., Kampouri, A., Voudouri, K. A., Proestakis, E., <u>Mylonaki, M.</u>, Papanikolaou, C.-A., Michailidis, K., Baars, H., Straume, A. G., Balis, D., Papayannis, A., Parrinello, T., and Amiridis, V.: First assessment of Aeolus L2A particle backscatter coefficient retrievals in the Eastern Mediterranean, *Atmos. Meas. Tech. Discuss.* 2022 [preprint], https://doi.org/10.5194/amt-2022-205 (under review).
- Papanikolaou, C.-A., Kokkalis, P., Soupiona, O., Solomos, S., Papayannis, A., <u>Mylonaki, M.</u>, Anagnou, D., Foskinis, R., Gidarakou, M.: Australian Bushfires (2019–2020): Aerosol Optical Properties and Radiative Forcing, *Atmosphere* 2022, 13, 867. <u>https://doi.org/10.3390/atmos13060867</u>
- Papanikolaou, C.-A., Papayannis, A., <u>Mylonaki, M.</u>, Foskinis, R., Kokkalis, P., Liakakou, E., Stavroulas, I., Soupiona, O., Hatzianastassiou, N., Gavrouzou, M.: Vertical Profiling of Fresh Biomass Burning Aerosol Optical Properties over the Greek Urban City of Ioannina, during the PANACEA Winter Campaign. *Atmosphere* 2022, 13, 94. <u>https://doi.org/10.3390/atmos13010094</u>
- Kokkalis, P., Soupiona, O., Papanikolaou, C.-A., Foskinis, R., <u>Mylonaki, M.</u>, Solomos, S., Vratolis, S., Vasilatou, V., Kralli, E., Anagnou, D.: Radiative Effect and Mixing Processes of a Long-Lasting Dust Event over Athens, Greece, during the COVID-19 Period, *Atmosphere* 2021, 12, 318. <u>https://doi.org/10.3390/atmos12030318</u>
- Mylonaki, M., Papayannis, A., Anagnou, D., Veselovskii, I., Kokkalis, P., Soupiona, O., Foskinis, R., Gidarakou, M., Kralli, E.: Optical and Microphysical Properties of Aged Biomass Burning Aerosols and Mixtures, Based on 9-Year Multiwavelength Raman Lidar Observations in Athens, Greece. *Remote Sens.* 2021, 13, 0. <u>https://doi.org/10.3390/rs13190000</u>
- <u>Mylonaki, M.</u>, Giannakaki, E., Papayannis, A., Papanikolaou, C.A., Komppula, M., Nicolae, D., Papagiannopoulos, N., Amodeo, A., Baars, H., Soupiona, O.: Aerosol type classification analysis using EARLINET multiwavelength and depolarization lidar observations, *Atmos. Chem. Phys.* 2021, 21, 2211–2227. <u>https://doi.org/10.5194/acp-21-2211-2021</u>
- Mylonaki, M., Papayannis, A., Papanikolaou, C.A., Foskinis, R., Soupiona, O., Maroufidis, G., Anagnou, D., Kralli, E.: Tropospheric vertical profiling of the aerosol backscatter coefficient and the linear particle depolarization ratio for different aerosol mixtures during the PANACEA campaign in July 2019 at Volos, Greece, *Atmos. Environ.* 2021, 247, 118184. <u>https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2021.118184</u>
- 11. Gratsea, M., Bösch, T., Kokkalis, P., Richter, A., Vrekoussis, M., Kazadzis, S., Tsekeri, A., Papayannis, A., <u>Mylonaki, M.</u>, Amiridis, V., Mihalopoulos, N., and Gerasopoulos, E.: Retrieval and evaluation of tropospheric-aerosol extinction profiles using multi-axis differential optical absorption

spectroscopy (MAX-DOAS) measurements over Athens, Greece, Atmos. *Meas. Tech.* 2021, 14, 749–767, <u>https://doi.org/10.5194/amt-14-749-2021</u>

- Soupiona, O., Papayannis, A., Kokkalis, P., Foskinis, R., Sánchez Hernández, G., Ortiz-Amezcua, P., <u>Mylonaki, M.</u>, Papanikolaou, C.-A., Papagiannopoulos, N., Samaras, S., Groß, S., Mamouri, R.-E., Alados-Arboledas, L., Amodeo, A., and Psiloglou, B.: EARLINET observations of Saharan dust intrusions over the northern Mediterranean region (2014–2017): properties and impact on radiative forcing, *Atmos. Chem. Phys.* 2020, 20, 15147–15166. <u>https://doi.org/10.5194/acp-20-15147-2020</u>
- Papanikolaou, C.A., Giannakaki, E., Papayannis, A., <u>Mylonaki, M.</u>, Soupiona, O.: Canadian biomass burning aerosol properties modification during a long-ranged event on August 2018, *Sensors* 2020, 20, 1–19. <u>https://doi.org/10.3390/s20185442</u>
- Kokkalis, P., Alexiou, D., Papayannis, A., Rocadenbosch, F., Soupiona, O., Raptis, P.I., <u>Mylonaki</u>, <u>M.</u>, Tzanis, C.G., Christodoulakis, J.: Application and Testing of the Extended-Kalman-Filtering Technique for Determining the Planetary Boundary-Layer Height over Athens, Greece, *Bound.-Layer Meteorol.* 2020, 176, 125–147. <u>https://doi.org/10.3390/rs13112175</u>
- Vratolis S., Fetfatzis, P., Argyrouli, A., Soupiona, O., <u>Mylonaki, M.</u>, Maroufidis, J., Kalogridis, A.-C., Manousakas, M., Bezantakos, S., Binietoglou, I., Labzovskii, L.D., Solomos, S., Papayannis, A., Močnik, G., O' Connor, E., Müller, D., Tzanis, C.G., Eleftheriadis, K.: Comparison and complementary use of in situ and remote sensing aerosol measurements in the Athens Metropolitan Area, *Atmos. Environ.* 2020, 117439, 1352-2310, <u>https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2020.117439</u>
- Soupiona, O., Samaras, S., Ortiz Amezcua, P., Böckmann, C., Papayannis, A., Moreira, G., Benavent-Oltra, J., Rascado, J.-L., Bedoya Velásquez, A., Olmo, F., Román, R., Kokkalis, P., <u>Mylonaki, M.</u>, Arboledas, L., Papanikolaou, C.-A., Foskinis, R.: Retrieval of optical and microphysical properties of transported Saharan dust over Athens and Granada based on multi-wavelength Raman lidar measurements: Study of the mixing processes, *Atmos. Environ. 2019*, 214, 116824. <u>https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.116824</u>
- Proestakis, E., Amiridis, V., Marinou, E., Binietoglou, I., Ansmann, A., Wandinger, U., Hofer, J., Yorks, J., Nowottnick, E., Makhmudov, A., Papayannis, A., Pietruczuk, A., Gialitaki, A., Apituley, A., Szkop, A., Muñoz Porcar, C., Bortoli, D., Dionisi, D., Althausen, D., Mamali, D., Balis, D., Nicolae, D., Tetoni, E., Liberti, G. L., Baars, H., Mattis, I., Stachlewska, I., Voudouri, K., Mona, L., <u>Mylonaki, M.</u>, Perrone, M. R., Costa, M. J., Sicard, M., Papagiannopoulos, N., Siomos, N., Burlizzi, P., Engelmann, R., Abdullaev, S., and Pappalardo, G.: EARLINET evaluation of the CATS Level 2 aerosol backscatter coefficient product, *Atmos. Chem. Phys.* 2019, 19, 11743-11764. https://doi.org/10.5194/acp-19-11743-2019
- Solomos, S., Bougiatioti, A., Soupiona, O., Papayannis, A., <u>Mylonaki, M.</u>, Papanikolaou, C., Argyrouli, A., Nenes, A.: Effects of regional and local atmospheric dynamics on the aerosol and CCN load over Athens, *Atmos. Environ.* 2019, 197, 53-65. <u>https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2018.10.025</u>
- Soupiona, O., Papayannis, A., Kokkalis, P., <u>Mylonaki, M.</u>, Tsaknakis, G., Argyrouli, A., and Vratolis, S.: Long-term systematic profiling of dust aerosol optical properties using the EOLE NTUA lidar system over Athens, Greece (2000-2016), *Atmos. Environ.* 2018, 183, 165-74. <u>https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2018.04.011</u>
- Vratolis, S., Fetfatzis, P., Argyrouli, A., Papayannis, A., Müller, D., Veselovskii, I., Bougiatioti, A., Nenes, A., Remoundaki, E., Diapouli, E., Manousakas, M., <u>Mylonaki, M.</u>, Eleftheriadis, K.: A new method to retrieve the real part of the equivalent refractive index of atmospheric aerosols, *J. Aeros. Science* 2018, 117, 54-62. <u>https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2017.12.013</u>
- 21. The EARLINET publishing group 2000-2015, Acheson, K., Adam, M., Alados-Arboledas, L., Althausen, D., Amato, F., Amiridis, V., Amodeo, A., Ansmann, A., Apituley, A., Arshinov, Y., Baars, H., Balis, D., Barragán, R., Batet, O., Belegante, L., Binietoglou, I., Bobrovnikov, S., Bohlmann, S., Bortoli, D., Boselli, A., Bösenberg, J., Bravo-Aranda, J.-A., Burlizzi, P., Carstea, E., Chaikovsky, A., Claramunt, P., Comerón, A., D'Amico, G., Daou, D., de Graaf, M., De Tomasi, F., Deleva, A., Dreischuh, T., Engelmann, R., Filioglou, M., Finger, F., Freudenthaler, V., Freville, P., Fernandez García, A.-J., Garcia-Vizcaino, D., Gausa, M., Geiß, A., Giannakaki, E., Giehl, H., Giunta, A., Granados-Muñoz, M.-J., Grein, M., Grigorov, I., Groß, S., Gruening, C., Guerrero-Rascado, J.-L.,

Hadjimitsis, D., Haefele, A., Haeffelin, M., Hanssen, I., Hayek, T., Iarlori, M., Kanitz, T., Kokkalis, P., Komppula, M., Kumar, D., Lange, D., Linné, H., Lopez, M.-A., Madonna, F., Mamouri, R.-E., Martucci, G., Matthias, V., Mattis, I., Molero Menéndez, F., Mitev, V., Mona, L., Montoux, N., Morille, Y., Müller, A., Müller, D., Muñoz-Porcar, C., <u>Mylonaki, M.</u>, Navas-Guzmán, F., Nemuc, A., Nicolae, D., Pandolfi, M., Papagiannopoulos, N., Papayannis, A., Pappalardo, G., Perrone, M.-R., Peshev, Z., Pietras, C., Pietruczuk, A., Pisani, G., Potma, C., Preißler, J., Pujadas, M., Putaud, J.-P., Radu, C., Ravetta, F., Reba, M.-N. Md, Reigert, A., Rizi, V., Rocadenbosch, F., Rodríguez-Gómez, A., Rosoldi, M., Ruth, A. A., Sauvage, L., Schmidt, J., Schnell, F., Schwarz, A., Seifert, P., Serikov, I., Sicard, M., Silva, A.-M., Simeonov, V., Siomos, N., Sirch, T., Spinelli, N., Stachlewska, I. S., Stoyanov, D., Szczepanik, D., Talianu, C., Tesche, M., Tomás, S., Trickl, T., Volten, H., Voudouri, K.-A., Wagner, F., Wandinger, U., Wang, X., Wiegner, M., Wilson, K., M.: EARLINET Volcanic Eruption 2000-2015. World Data Center for Climate (WDCC) at DKRZ (2018).

Publications in peer-reviewed proceedings of international conferences:

- <u>Mylonaki, M.</u>, Gini, M., Pilou, M., Chalvatzaki, E., Papayannis, A., Eleftheriadis, K., Nenes, A., Lazaridis, M.: Wildland fire and windblown African dust aerosols' deposition dose rates in the human respiratory system, 11<sup>th</sup> International Aerosol Conference, 4-9 September 2022, Athens, Greece
- Anagnou, D., Papayannis, A., <u>Mylonaki, M.</u>, Gidarakou, M., Papanikolaou, C.-A., Soupiona, O., Kokkalis, P., Foskinis, R., and Kralli, E: Long-range transport of aerosols originating from the Black Sea as observed over Athens by a synergy of remote sensing techniques during 2014-2020, 11<sup>th</sup> International Aerosol Conference, 4-9 September 2022, Athens, Greece
- Papayannis, A., Papanikolaou, C.-A., Anagnou, D., Foskinis, R., Moutafidou, A., Aktypis, A., Eleftheriadis, K., Nenes, A., Gini, M., Motos, G., Fetfatzis, P., Gidarakou, M., Granakis, K., Zografou, O., Spitieri, C., Diapouli, E., Komppula, M., Vakkari, V., Berne, A., Vogel, F., Möhler, O., Kokkalis, P., <u>Mylonaki, M.</u>, Soupiona, O., Solomos, S., Podvin, T., Goloub, P., Kaltsonoudis, C., and Pandis, S.: Highlights of tropospheric aerosol transport from a coastal to a high-altitude station based on in situ and remote sensing measurements during the CALISHTO-HELMOS Campaign, 11<sup>th</sup> International Aerosol Conference, 4-9 September 2022, Athens, Greece
- Foskinis, R., Papayannis, A., Nenes, A., Eleftheriadis, K., Vratolis, S., Fetfatzis, P., Gini, M., Spitieri, C., Diapouli, E., Zografou, O., Granakis, K., Ghislain, M., Berne, A., Billault-Roux, A.-C., Komppula, M., Vakkari, V., Papanikolaou, C.-A., Anagnou, D., Soupiona, O., Kokkalis, P., Mylonaki, M., Gidarakou, M., Kaltounidis, C., Moutafidou, A., Aktypis, A., Vogel, F., Mohler, O., Pandis, S. N.: Aerosol-Cloud Interaction studies during the CALISHTO-HELMOS Campaign using a synergy of remote sensing and in situ techniques, 11<sup>th</sup> International Aerosol Conference, 4-9 September 2022, Athens, Greece
- <u>Mylonaki, M.</u>, Papayannis, A., Papanikolaou, C.-A., Soupiona, O., Solomos, S.: Radiative effects of extreme Attika fires and windblown African dust, August 2021, Athens, Greece, 30<sup>th</sup> International Lidar and Radar Conference, 26 June-01 July 2022, Big Sky, Montana, USA
- Papanikolaou, C.-A., Kokkalis, P., Soupiona, O., Solomos, S., Papayannis, A., <u>Mylonaki, M.</u>, Foskinis, R., Anagnou, D., Gidarakou, M.: Optical properties and radiative forcing of biomass burning aerosols during the 2019-2020 Australian bushfire season, 30<sup>th</sup> International Lidar and Radar Conference, 26 June-01 July 2022, Big Sky, Montana, USA
- Gidarakou, M., Anagnou, D., Papanikolaou, C.A., Foskinis, R., Papayannis, A., <u>Mylonaki, M.</u>, Kokkalis, P., Soupiona, O., Solomos, S., Podvin, T., Goloub, P., Kralli, E.: Transport of Saharan Dust Aerosols over the Helmos Mountain during the CALISHTO-HELMOS Campaign studied by the Synergy of Remote Sensing Techniques, 30<sup>th</sup> International Lidar and Radar Conference, 26 June-01 July 2022, Big Sky, Montana, USA
- 8. Papayannis, A., Papanikolaou, C.A., Anagnou, D., Foskinis, R., Moutafidou, A., Aktypis, A., Eleftheriadis, K., Nenes, A., Gini, M., Fetfatzis, P., Gidarakou, M., Granakis, K., Zografou, O.,

Spitieri, C., Diapouli, E., <u>Mylonaki, M.,</u> Kokkalis, P., Soupiona, O., Solomos, S., Podvin, T., Goloub, P.: Synergistic Use of Lidar and In Situ aerosol measurements over a high altitude site (1800-2300 m): Highlights from the CALISPHTO Campaign at the Helmos Mountain (Autumn 2021), *30<sup>th</sup> International Lidar and Radar Conference*, 26 June-01 July 2022, Big Sky, Montana, USA

- <u>Mylonaki, M.</u>, Papayannis, A., Anagnou, D., Veselovskii, I., Papanikolaou, C.-A., Kokkalis, P., Soupiona, O., Foskinis, R., Gidarakou, M. and Kralli, E.: Optical and Microphysical Properties of Biomass Burning Aerosols and Mixtures Lidar Observations in Athens, Greece (2011-2019), 3<sup>rd</sup> European Lidar Conference online, 16-18 November 2021, Granada, Spain.
- Papanikolaou, C. A., Papayannis, A., <u>Mylonaki, M.</u>, Soupiona, O., Kralli, E., Kokkalis, P., Foskinis, R., Anagnou, D. and Gidarakou, M.,: Long-range transport of aerosols over Athens, Greece during Autumn 2020, 3<sup>rd</sup> European Lidar Conference online, 16-18 November 2021, Granada, Spain.
- Gidarakou, M., Papayannis, A., Anagnou, D., <u>Mylonaki, M.</u>, Soupiona, O., Papanikolaou, C. A., Foskinis, R., Kralli, E., Kokkalis, P.: Highlights of aerosols multiwavelength lidar measurements over Athens, Greece (2020-2021), 3<sup>rd</sup> European Lidar Conference online, 16-18 November 2021, Granada, Spain.
- Voudouri, K. A., Nicolae, D., Mona, L., D'Amico, G., Amiridis, V., Marinou, E., Gialitaki, A., Kampouri, A., Tsekeri, A., Sicard, M., Rodriguez, A., Romano, S., Perrone, M. R., Floutsi, A., Shang, X., Bohlmann, S., Papagiannopoulos, N., Siomos, N., Talianu, C., Stachlewska, I., Fortuna, R., <u>Mylonaki, M.</u> and Balis, D.: Aerosol typing over Europe during the COVID-19 campaign: possible changes in the dominant aerosol types during the lockdown, 3<sup>rd</sup> European Lidar Conference online, 16-18 November 2021, Granada, Spain.
- Kralli, E., Foskinis, R., Papayannis, A., Soupiona, O., de Lastic, H.–X., <u>Mylonaki, M.</u>, Papanikolaou, C.A., Anagnou, D. and Gidarakou, M.: An intercomparison study of the retrieval algorithm for water vapour mixing Ratio profiles using the Raman lidar technique and the ERA5 model, 3<sup>rd</sup> European Lidar Conference online, 16-18 November 2021, Granada, Spain.
- 14. <u>Mylonaki, M.</u>, Papayannis, A., Papanikolaou, C.A., Foskinis, R., Soupiona, O. and Maroufidis, I.,: Aerosol Typing from AIAS Depolarization Lidar Data, Observed over Volos City, during PANACEA Campaign, July 2019, *2nd European Lidar Conference online*, 18-20 November 2020, Granada, Spain.
- 15. Papanikolaou, C.-A., Papayannis, A., <u>Mylonaki, M.</u>, Soupiona, O., Giannakaki, E. and Foskinis, R.: Australian bushfires during January 2020: biomass burning aerosol properties retrieved from satellite observations, 2<sup>nd</sup> European Lidar Conference online, 18-20 November 2020, Granada, Spain.
- 16. Soupiona, O., Foskinis, R., Papayannis, A., Sánchez-Hernández, G., OrtizAmezcua, P., <u>Mylonaki, M.</u>, Papanikolaou, C.A., Alados-Arboledas, L. and Psiloglou, B.: Radiative effects of Saharan dust spheroidal aerosols over the Northern Mediterranean using lidar retrieved signals as inputs in Libradtran model, 2<sup>nd</sup> European Lidar Conference online, 18-20 November 2020, Granada, Spain.
- Papayannis, A., Papanikolaou, C.A., Foskinis, R., <u>Mylonaki, M.</u>, Soupiona, O., Kralli, E., Tombrou, M., Bossioli, E. and Maroufidis, I.,: Saharan Dust Particles Observed by Elastic-Raman Depolarization Lidars over Three Greek Urban Sites (Volos, Ioannina and Athens) During the Panacea Campaigns 2019-2020, 2<sup>nd</sup> European Lidar Conference online, 18-20 November 2020, Granada, Spain.
- Kralli, E., Papayannis, A., Foskinis, R., Soupiona, O., de Lastic, H.-X., <u>Mylonaki, M.</u> and Papanikolaou, C.A.: Systematic water vapour Raman Lidar Measurements over the free troposphere of Athens, Greece using the EOLE Raman lidar system: Implication for Stratospheric-Tropospheric Exchanges, 2<sup>nd</sup> European Lidar Conference online, 18-20 November 2020, Granada, Spain.
- Maroufidis, I., Soupiona, O., Lentaris, G., <u>Mylonaki, M.</u>, Soudris, D. and Papayannis, A.: Detection and Segmentation of Aerosol Layers & Clouds using Lidar Measurements, 2<sup>nd</sup> European Lidar Conference online, 18-20 November 2020, Granada, Spain.
- Foskinis, R., Papayannis, A., Komppula, M., Bossioli, E., Tombrou, M., Soupiona, O., Kralli, E., Papanikolaou, C. A. and <u>Mylonaki, M.</u>: Aerosol effects on Low Cloud formation over the Attica region, Greece, 2<sup>nd</sup> European Lidar Conference online, 18-20 November 2020, Granada, Spain.
- 21. <u>Mylonaki, M.</u>, Giannakaki, E., Papayannis, A., Floca, E., Komppula, M.: Aerosol typing based on multiwavelength lidar observations and meteorological data, Proc. 29<sup>th</sup> International Laser Radar

*Conference*, 24-28 June 2019, Hefei, China. EPJ Web Conferences 237, 08003 (2020), https://doi.org/10.1051/epjconf/202023708003

- Giannakaki, E., Filioglou, M., <u>Mylonaki, M.</u>, Shang., X., Komppula, M.: Decomposition of a complex aerosol profile: application to synthetic lidar data, 29<sup>th</sup> International Laser Radar Conference, 24-28 June 2019, Hefei, China.
- Soupiona, O., Papayannis, A., <u>Mylonaki, M.</u>, Papagiannopoulos, N., Ortiz-Amezcua, P., Mamouri, R.E., Gross, S., Papanikolaou, C.A., Kokkalis, P.,: Saharan dust events over the northern Mediterranean: 4 years of measurements over 4 EARLINET stations, Proc. 29<sup>th</sup> International Laser Radar Conference, 24-28 June 2019, Hefei, China. EPJ Web Conferences 237, 05010 (2020), <u>https://doi.org/10.1051/epjconf/202023705010</u>
- Adam, M., Nicolae, D., Belegante, L., Stachlewska., I.S., Szczepanik, D., <u>Mylonaki, M.</u>, Papanikolaou, C.A., Siomos, N., Voudouri, K.A., Apituley, A., Alados-Arboledas, L., Bravo-Aranda, J.A., Pietruczuk, A., Chaikovski, A., Sicard, M., Munoz-Porcar, C., Mattis, I., Papagiannopoulos, N., Mona, L., Baars, H., Wandinger, U., Bortoli, D., Grigorov, I., Peshev, Z., Antonescu, B.,: Biomass burning measurements in EARLINET, Proc. *29th International Laser Radar Conference*, 24-28 June 2019, Hefei, China. EPJ Web Conferences 237, 05005 (2020), https://doi.org/10.1051/epjconf/202023705005
- Papanikolaou, C. A., Gianakaki, E., Papayannis, A., <u>Mylonaki, M.</u>, and Soupiona, O.,: Optical properties of Canadian biomass burning particles over Europe observed with CALIPSO and groundbased lidar systems, Proc. 29<sup>th</sup> International Laser Radar Conference, 24-28 June 2019, Hefei, China. EPJ Web Conferences 237, 08016 (2020), <u>https://doi.org/10.1051/epjconf/202023708016</u>
- 26. Papayannis, A., Kokkalis P., <u>Mylonaki M.</u>, Soupiona O., Papanikolaou C.A., Foskinis R. and Giakoumaki A.,: Recent upgrades of the EOLE and AIAS lidar systems of the National Technical University of Athens operating since 2000, in Athens, Greece, 29<sup>th</sup> International Laser Radar Conference, 24-28 June 2019, Hefei, China.
- Foskinis, R., Papayannis, A., Soupiona, O., Kokkalis, P., <u>Mylonaki, M.</u>, Papanikolaou, C.A., Argyrouli, A., Komppula, M., Vratolis, S. and Elefteriadis, K.,: A case study of interaction between aerosols and clouds based on HYGRA-CAMPAIGN measurements, 29<sup>th</sup> International Laser Radar Conference, 24-28 June 2019, Hefei, China.
- Soupiona, O., Böckmann, C., Papayannis, A., <u>Mylonaki, M.</u>, and Kokkalis, P.,: Lidar-based Inversions of Aerosol Microphysical Parameters from Long-range Transported Events over Athens, Proc. 1<sup>st</sup> European Lidar Conference, 3-5 July 2018, Thessaloniki, Greece.
- Papayannis, A., <u>Mylonaki, M.</u>, Soupiona, O., Kokkalis, P., Tsaknakis, G.,: Highlights of Biomass Burning Events from 10-year Profiling over Athens, Greece in the Frame of EARLINET (2007-2017), Proc. 1<sup>st</sup> European Lidar Conference, 3-5 July 2018, Thessaloniki, Greece.
- <u>Mylonaki, M.</u>, Papayannis, A., Mamouri, R., Argyrouli, A., Kokkalis, P., Tsaknakis, G., Soupiona, O.,: Aerosol optical properties variability during biomass burning events observed by the EOLE-AIAS depolarization lidars during Biomass Burning events over Athens, Greece (2007-2016), 28<sup>th</sup> International Laser Radar Conference, 25-30 June 2017, Bucharest, Romania. EPJ Web of Conferences 176, 05022, 2018. <u>https://doi.org/10.1051/epjconf/201817605022</u>
- Soupiona, O., <u>Mylonaki, M.</u>, Papayannis, A., Argyrouli, A., Kokkalis, P., Vratolis, S. and Tsaknakis, G.,: Long-term systematic profiling of dust aerosol optical properties using the EOLE NTUA Lidar system over Athens, Greece, (2000-2016), 28<sup>th</sup> International Laser Radar Conference, 25-30 June 2017, Bucharest, Romania. EPJ Web of Conferences 176, 05029, 2018. <u>https://doi.org/10.1051/epjconf/201817605029</u>
- Amodeo, A., D'Amico, G., Giunta, A., Papagiannopoulos, N., Papayannis, A., Argyrouli, A., <u>Mylonaki, M.</u>, Tsaknakis, G., Kokkalis, P., Soupiona, O., Tzanis, C.,: ATHLI16: The Athens lidar intercomparison campaign, 28<sup>th</sup> International Laser Radar Conference, 25-30 June 2017, Bucharest, Romania. EPJ Web of Conferences 176, 09008, 2018. <u>https://doi.org/10.1051/epjconf/201817609008</u>
- Proestakis, M., Amiridis, V., Kottas, M., Marinou, E., Binietoglou, I., Ansmann, A., Wandinger, U., Yorks, J., Nowottnick, E., Makhmudov, A., Papayannis, A., Pietruczuk, A., Gialitaki, A., Apituley, A., Muñoz-Porcar, C., Bortoli, D., Dionisi, D., Althausen, D., Mamali, D., Balis, D., Nicolae, D.,

Tetoni, E., Luigi Liberti, G., Baars, H., Stachlewska, I. S., Voudouri, K.A., Mona, L., <u>Mylonaki, M.</u>, Perrone, M. R., João Costa, M., Sicard, M., Papagiannopoulos, N., Siomos, N., Burlizzi, P., Engelmann, R., Abdullaev, S. F., Hofer, J., Pappalardo, G.,: EARLINET Validation of CATS L2 Product, 28<sup>th</sup> International Laser Radar Conference, 25-30 June 2017, Bucharest, Romania. *EPJ Web* of Conferences 176, 02005, 2018. <u>https://doi.org/10.1051/epjconf/201817602005</u>